Tome 13. N° 5. Mai 1952.

LE JOURNAL DE PHYSIQUE

ET

LE RADIUM

THÉORIE DU TRAÎNAGE MAGNÉTIQUE DE DIFFUSION

Par M. Louis NÉEL.

Laboratoire d'Électrostatique et de Physique du Métal, Grenoble.

Sommaire. — Après avoir rappelé l'existence et la théorie du traînage de fluctuations (ou traînage irréversible), l'auteur développe une théorie du traînage magnétique de diffusion (ou traînage réversible) selon laquelle les atomes étrangers interstitiels, qui sont à l'origine du phénomène, agiraient par couplage magnétocristallin entre leur position et la direction de l'aimantation spontanée. Il montre que tout se passe comme s'il fallait ajouter aux termes ordinaires d'anisotropie magnétique une énergie, dite de stabilisation, susceptible d'atteindre des valeurs de l'ordre de 100 ergs/cm³. Il en déduit l'expression générale de la pression subie, à un instant donné, par une paroi à 90° ou à 180°, du fait des phénomènes de diffusion des atomes étrangers, connaissant les positions antérieures de la paroi. Il donne une méthode approchée de calcul des effets de la diffusion, lorsque ceux-ci peuvent être assimilés à une petite perturbation du processus ordinaire d'aimantation.

Quelques exemples simples d'application de la théorie sont alors donnés et permettent d'interpréter les expériences les plus classiques de désaccommodation ou de traînage, dans le cas de variations discontinues du champ appliqué ou dans le cas de champs alternatifs sinusoïdaux. L'auteur étudie ensuite des exemples plus compliqués et explique notamment le traînage anomal de Mitkewitch ainsi que les expériences de Webb et Ford relatives à la perméabilité en courant alternatif des tôles au silicium. Il montre comment on peut rendre compte des variations de cette perméabilité en fonction des temps écoulés depuis la désaimantation et depuis l'application du champ de mesure, ainsi que les variations de cette perméabilité en fonction du champ magnétique.

La théorie paraît donner une interprétation qualitative satisfaisante des propriétés actuellement connues caractérisant le traînage de diffusion.

1. **Introduction.** — Nous avons déjà montré, dans un Rapport présenté au Colloque international de Ferromagnétisme et d'Antiferromagnétisme de Grenoble de 1950 [1], qu'il convenait de distinguer dans le traînage magnétique deux catégories bien distinctes auxquelles nous avons donné, d'une part, le nom de *traînage irréversible ou traînage de fluctuations* et, d'autre part, le nom de *traînage réversible ou traînage de diffusion.*

Le traînage de fluctuations affecte toutes les substances ferromagnétiques et obéit à des lois particulièrement simples et bien étudiées [2], [3], [4] sur lesquelles nous ne reviendrons pas. Il paraît dû aux fluctuations internes des champs de dispersion.

Le traînage de diffusion est associé, comme Snoek l'a montré dans une série remarquable de publications [5], à la diffusion d'atomes étrangers à l'intérieur du cristal ferromagnétique : dans le réseau du fer, il s'agit par exemple d'atomes de carbone ou d'azote. D'après Snoek, les tensions internes joueraient un rôle essentiel dans le mécanisme du phénomène mais nous avons montré qu'il fallait plutôt y voir les effets de l'énergie magnétocristalline. Nous avons déjà posé les bases essentielles de cette théorie dans le Rapport cité plus haut, traité des exemples simples et indiqué quelques vérifications expérimentales des formules obtenues.

Malheureusement, le manque de place ne nous avait permis, ni de donner aux développements théoriques une étendue convenable, ni d'étudier le comportement des parois à 180°, ni d'étudier le traînage dans un champ magnétique alternatif. Nous avons donc repris la question en donnant à l'exposé plus de rigueur et d'étendue, tout en profitant pour interpréter des expériences assez anciennes mais très soignées de C. E. Webb et L. H. Ford [6] relatives à l'influence du temps sur la perméabilité en courant alternatif. Par contre, nous ne reviendrons

pas sur les vérifications expérimentales déjà exposées dans le Rapport cité auquel nous renvoyons le lecteur.

Nous nous bornerons à étudier la diffusion des atomes de carbone, mais tous nos résultats sont transposables, *mutatis mutandis*, à la diffusion d'atomes d'hydrogène ou d'azote. En outre, la diffusion de *trous*, correspondant à des places éventuellement vacantes du réseau, doit être accompagnée de phénomènes en tous points analogues.

2. **Le carbone dans le réseau du fer** α. — Considérons un cristal de fer, dans le réseau du cube centré (fer α), rapporté à trois axes rectangulaires $Oxyz$, parallèles aux axes quaternaires. On sait qu'un tel cristal est susceptible de dissoudre une faible quantité de carbone dont les atomes occupent dans le cristal des sites interstitiels tels

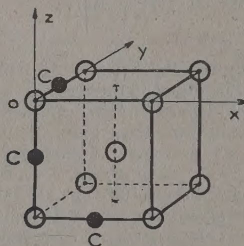


Fig. 1. — Position des atomes de carbone dans le réseau cristallin du fer α.

que c (*fig.* 1). Chaque atome de carbone possède ainsi deux voisins Fe diamétralement opposés : la droite D qui joint les centres de ces deux voisins est parallèle à Ox, Oy ou Oz. On peut donc distinguer, suivant l'orientation de D, trois catégories de sites interstitiels que nous désignerons sous le nom de sites x, y ou z. Si la symétrie était parfaitement cubique, les sites x, y ou z seraient rigoureusement équivalents. En réalité, l'existence de l'aimantation spontanée introduit une dissymétrie et différencie les sites x, y et z.

Nous admettrons qu'il est possible de tenir compte de cette dissymétrie en attribuant à chaque site interstitiel *occupé par un atome de carbone* une énergie égale à $w \cos \varphi^2$, où φ désigne l'angle de la droite D correspondante avec la direction de l'aimantation spontanée. Il en résulte qu'en désignant par α, β, γ, les cosinus directeurs définissant la direction de l'aimantation spontanée par rapport à $Oxyz$, les sites occupés x, y ou z sont respectivement caractérisés par des énergies égales à $w\alpha^2$, $w\beta^2$ ou $w\gamma^2$.

Pour déterminer théoriquement cette énergie, il serait nécessaire de connaître les perturbations que la présence des atomes de carbone apporte aux couplages magnétocristallins. Dans l'état actuel de la théorie, ce n'est pas possible : tout au plus peut-on estimer par comparaison l'ordre de grandeur possible de w. Imaginons, en effet, une substance idéale de formule FeC, c'est-à-dire une sorte de martensite, dans laquelle les atomes de fer seraient exactement placés comme dans le fer α, mais où tous les sites interstitiels d'une même catégorie, x par exemple, et ceux-là seulement, seraient occupés par des atomes de carbone. Cette substance posséderait certainement une très forte anisotropie, de caractère quadratique, avec une constante d'anisotropie qui pourrait être d'un ordre de grandeur comparable à celle des corps fortement anisotropes déjà connus, par exemple à celle du composé MnBi, étudié par C. Guillaud [7], qui est de $3{,}8 . 10^8$ ergs/mole. En divisant cette valeur par le nombre d'Avogadro, on constate qu'il n'est pas déraisonnable de s'attendre ici à des valeurs de w de l'ordre de $0{,}6 . 10^{-15}$ erg.

Il faut bien remarquer que, dans cette conception, w est d'origine purement magnétocristalline et ne présente pas de rapport nécessaire avec d'éventuelles modifications des paramètres du réseau suivant les directions Ox, Oy ou Oz. Au contraire, Snoek a étudié [5] la redistribution des atomes de carbone provoquée par une déformation élastique du réseau : une dilatation du réseau suivant Ox favorise, par exemple, l'occupation des sites x. C'est donc un problème tout différent sur lequel nous reviendrons plus loin.

3. **Répartition d'équilibre des atomes de carbone.** — Soit un cristal de fer α contenant c atomes de carbone par centimètre cube. Nous supposerons toujours que c est petit vis-à-vis du nombre des atomes de fer, en accord d'ailleurs avec la faible solubilité du carbone dans le fer α. Soit, en outre, α, β, γ, la direction de l'aimantation spontanée.

Lorsque l'équilibre est réalisé à la température T, le nombre l_0, m_0 ou n_0 des atomes de carbone situés en x, y ou z est donné par

$$\left.\begin{aligned} l_0 &= C_0 \exp\left\{-\frac{w\alpha^2}{kT}\right\}, \\ m_0 &= C_0 \exp\left\{-\frac{w\beta^2}{kT}\right\}, \\ n_0 &= C_0 \exp\left\{-\frac{w\gamma^2}{kT}\right\}, \end{aligned}\right\} \tag{1}$$

où la constante C_0 est déterminée par la condition

$$l_0 + m_0 + n_0 = c. \tag{2}$$

A la température ordinaire, kT est de l'ordre de 10^{-14} erg; comme, d'autre part, l'ordre de grandeur de w indiqué plus haut, $0{,}6 . 10^{-15}$ erg, peut être considéré comme un maximum, il en résulte qu'avec une approximation raisonnable, $\frac{w}{kT}$ peut être considéré comme petit et que l'on peut développer les

exponentielles en série, en négligeant les termes en $\frac{w^2}{k^2 T^2}$, ce qui donne

$$\left.\begin{aligned} l_0 &= \frac{c}{3}\left[1+\left(\frac{1}{3}-\alpha^2\right)\frac{w}{kT}\right], \\ m_0 &= \frac{c}{3}\left[1+\left(\frac{1}{3}-\beta^2\right)\frac{w}{kT}\right], \\ n_0 &= \frac{c}{3}\left[1+\left(\frac{1}{3}-\gamma^2\right)\frac{w}{kT}\right], \end{aligned}\right\} \tag{3}$$

Cette répartition d'équilibre demande un certain temps pour s'établir. Inversement, lorsqu'elle est établie, elle n'a pas le temps de se modifier au cours de changements très rapides de l'orientation de l'aimantation spontanée, de sorte, qu'en désignant par α', β', γ', les cosinus directeurs de l'aimantation spontanée au cours d'un tel processus, la part de l'énergie du système due à la présence des atomes de carbone s'écrit, par centimètre cube,

$$E_d = w(l_0\alpha'^2 + m_0\beta'^2 + n_0\gamma'^2). \tag{4}$$

Avec les valeurs de l_0, m_0, n_0, données par les équations (3), on trouve, en négligeant deux termes qui ne dépendent pas de l'orientation de l'aimantation spontanée,

$$E_d = -W_0(\alpha^2\alpha'^2 + \beta^2\beta'^2 + \gamma^2\gamma'^2), \tag{5}$$

avec la notation

$$W_0 = \frac{cw^2}{3kT}. \tag{6}$$

Ainsi, le fait d'avoir laissé longtemps séjourner l'aimantation spontanée suivant une certaine direction α, β, γ, introduit dans l'expression de l'énergie un terme d'anisotropie que nous désignerons sous le nom d'*énergie de stabilisation*. Il importe de fixer l'ordre de grandeur possible de cette énergie. Dans des échantillons de fer riches en carbone, comme ceux que Snoek a étudiés [5], le rapport atomique $\frac{\text{carbone}}{\text{fer}}$ vaut $2{,}8.10^{-4}$, ce qui correspond à $c = 2{,}37.10^{19}$. Pour $T = 300°$ K et $w = 0{,}6.10^{-15}$ erg, on trouve ainsi $W_0 = 70$ ergs/cm³.

Dans la théorie de Snoek, les déformations élastiques du réseau, qui provoquent la redistribution des atomes de carbone, proviennent de la magnétostriction. Nous avons montré antérieurement [1] que l'énergie ainsi mise en jeu n'atteignait que 8 ergs/cm³ pour la même concentration de carbone, et cela seulement à l'intérieur des parois de Bloch, c'est-à-dire dans une fraction du volume total qui est de l'ordre du millième pour les substances en question. Au contraire, c'est dans la substance tout entière que l'énergie de stabilisation W_0, considérée ici, prend la valeur donnée par la relation (6) : il paraît donc légitime de négliger devant elle l'énergie de Snoek.

4. Vitesse d'acquisition de l'énergie de stabilisation. — Cette vitesse dépend surtout de la hauteur des barrières de potentiel qui séparent deux positions stables adjacentes d'un atome de carbone. Soit, par exemple, l_0, m_0, n_0, le nombre des atomes de carbone situés sur les sites x, y, z, dans la répartition d'équilibre correspondant à une direction donnée et fixe α, β, γ, de l'aimantation spontanée; soit $l_0 + l$, $m_0 + m$, $n_0 + n$, leur nombre réel à l'instant t. Le nombre $-\mathrm{d}l$ des atomes de carbone qui abandonnent les sites x pendant un intervalle de temps $\mathrm{d}t$ est proportionnel à $\mathrm{d}t$, à $l_0 + l$ et à un certain coefficient v_α qui dépend principalement de la hauteur de la barrière de potentiel et accessoirement de α^2 :

$$\mathrm{d}l = -(l_0 + l)v_\alpha\,\mathrm{d}t. \tag{7}$$

Si l'on admet que l'allure de la « montée » vers le sommet de la barrière de potentiel ne dépend pas de l'allure de la « descente » sur le versant opposé, les atomes qui abandonnent les sites x doivent se répartir également sur les sites y et z (les passages directs de x en x ne sont pas possibles). Le bilan des atomes gagnés et perdus par les sites x s'écrit donc

$$\mathrm{d}l = \left[-(l + l_0)v_\alpha + \frac{1}{2}(m + m_0)v_\beta + \frac{1}{2}(n + n_0)v_\gamma\right]\mathrm{d}t. \tag{8}$$

Deux équations analogues, obtenues par permutation circulaire, donnent $\mathrm{d}m$ et $\mathrm{d}n$. Dans l'état d'équilibre, l, m et n sont nuls par définition; il en est donc de même de $\mathrm{d}l$, $\mathrm{d}m$ et $\mathrm{d}n$. Les v_α, v_β, v_γ, sont donc nécessairement liés par les relations

$$v_\alpha = \frac{v}{l_0}, \qquad v_\beta = \frac{v}{m_0}, \qquad v_\gamma = \frac{v}{n_0}, \tag{9}$$

où v est un certain paramètre. Nous dégagerons plus loin la signification physique de ces relations (9). Compte tenu des relations (9), l'équation (8) s'écrit

$$\mathrm{d}l = \frac{v}{2}\left(\frac{m}{m_0} + \frac{n}{n_0} - 2\frac{l}{l_0}\right)\mathrm{d}t, \tag{10}$$

avec deux relations analogues pour $\mathrm{d}m$ et $\mathrm{d}n$.

Nous avons, d'autre part, supposé que $\frac{w}{kT}$ était petit devant l'unité : les écarts à l'équilibre restent donc petits et l_0, m_0, n_0, restent toujours voisins de $\frac{c}{3}$. On peut donc en première approximation considérer ces trois quantités comme égales dans l'équation (10), ce qui, joint au fait que $l+m+n=0$, permet de transformer cette équation en

$$\mathrm{d}l = -\frac{3}{2}vl\,\mathrm{d}t, \tag{11}$$

avec deux équations analogues obtenues en remplaçant l par m ou n.

Or, l'énergie de stabilisation, définie par l'équation (4), est une fonction linéaire et homogène de l_0, m_0, n_0, et plus généralement de l_0+l, m_0+m, n_0+n : elle doit donc obéir à une équation du type (11). En désignant par E la valeur de l'énergie de stabilisation à un instant t, on aura donc

$$\mathrm{d}E = -\frac{3}{2}(E - E_d)v\,\mathrm{d}t. \tag{12}$$

L'énergie de stabilisation s'approche donc exponentiellement de sa valeur d'équilibre E_d avec une constante de temps θ donnée par

$$\theta = \frac{2}{3v}. \tag{13}$$

Supposons maintenant que la direction α, β, γ, de l'aimantation spontanée, au lieu d'être fixe comme cela a été admis précédemment, soit une fonction quelconque du temps. Proposons-nous de calculer la valeur $E(t)$ de l'énergie de stabilisation à une époque t : ce sera naturellement une fonction linéaire et homogène de α'^2, β'^2, γ'^2, où α', β', γ' correspondent aux différentes positions virtuelles instantanées de l'aimantation spontanée à l'époque t. A toute époque τ, comprise entre l'époque origine O et l'époque finale t, la valeur d'équilibre $E_d(\tau)$ de l'énergie de stabilisation est une fonction de τ par l'intermédiaire de α^2, β^2, γ^2 [*cf.* (5)]. L'équation différentielle (12) prend alors la forme

$$\frac{\mathrm{d}E}{\mathrm{d}\tau} + \frac{E}{\theta} = \frac{E_d(\tau)}{\theta}. \tag{14}$$

Cette équation s'intègre aisément. Nous supposerons qu'à l'époque initiale $\tau = 0$, l'énergie d'anisotropie est nulle, ou, d'une façon plus précise, que les atomes de carbone sont alors également répartis sur les sites x, y, et z. Nous montrerons plus loin comment on peut atteindre pratiquement cet état initial (*cf.* § 9). Dans ces conditions, en supposant d'abord nul le second membre de l'équation (14), puis en faisant varier la constante d'intégration, on obtient

$$E(t) = \int_0^t E_d(\tau)\,\mathrm{e}^{-\frac{t-\tau}{\theta}}\frac{\mathrm{d}\tau}{\theta}. \tag{15}$$

5. **La dispersion des constantes de temps.** — La constante de temps θ est certainement très sensible aux variations éventuelles de la hauteur de la barrière de potentiel qui sépare deux sites voisins, c'est-à-dire à la valeur w_a de l'énergie d'activation qui est nécessaire pour atteindre le sommet de cette barrière. La relation entre θ et w_a est, en effet, du type

$$\theta = C\exp\left\{\frac{w_a}{kT}\right\}, \tag{16}$$

où le facteur C ne doit varier que lentement avec T et w_a.

Remarquons ici, qu'en introduisant dans l'équation (9) la valeur de v tirée des équations (13) et (16), ainsi que la valeur de l_0 donnée par l'équation (1), on obtient

$$v_\alpha = \frac{2}{3CC_0}\exp\left\{-\frac{w_a - w\alpha^2}{kT}\right\}. \tag{16 bis}$$

Cette équation nous montre que tout se passe comme si l'énergie d'activation devait être diminuée de l'énergie d'interaction entre les atomes de carbone et l'aimantation spontanée : c'est bien ce à quoi il fallait logiquement s'attendre.

Si nous revenons maintenant à l'équation (16), il est à prévoir que les différentes perturbations du réseau : inclusions, dislocations, atomes étrangers, etc. qui modifient localement les valeurs de w_a, vont entraîner des variations considérables de θ, sans pour cela modifier nécessairement beaucoup la valeur de W_0. D'après Snoek [5], $\frac{w_a}{k}$ serait voisin de 8 900° K; il en résulte qu'à la température ordinaire, θ varie dans le rapport de 1 à 400 lorsque w_a varie seulement de 20 pour 100. La variation de W_0 doit être du même ordre que celle de w_a.

Pour tenir compte d'une manière approchée, mais suffisamment simple, de cette dispersion des constantes de temps, nous supposerons possible de subdiviser le cristal en domaines très petits, de quelques angströms de diamètre, correspondant chacun à une certaine constante de temps, et nous désignerons par $p(\theta)\,d\theta$ la probabilité de trouver cette constante de temps comprise entre θ et $\theta + d\theta$. Cette probabilité doit obéir à la relation

$$\int_0^\infty p(\theta)\,\mathrm{d}\theta = 1. \tag{17}$$

Dans ces conditions, l'énergie de stabilisation $E(t)$, donnée par l'équation (15), est la somme des énergies relatives aux différents petits domaines, de sorte qu'il faut écrire, en général,

$$E(t) = \int_0^t E_d(\tau)\,g(t-\tau)\,\mathrm{d}\tau, \tag{18}$$

où la fonction $g(t-\tau)$ est définie par

$$g(t-\tau) = \int_0^\infty p(\theta)\,\mathrm{e}^{-\frac{t-\tau}{\theta}}\,\mathrm{d}\theta. \tag{19}$$

Pour préciser davantage, l'hypothèse la plus naturelle et la plus simple consiste à supposer que les énergies d'activation w_a sont uniformément distribuées entre une limite inférieure w' et une limite supérieure w'' : la probabilité de trouver w_a compris entre w_a et $w_a + \mathrm{d}w_a$ est donc égale à $\frac{\mathrm{d}w_a}{(w''-w')}$, ce qui, d'après la relation (16), donne

$$p(\theta) = \frac{kT}{\theta(w''-w')} = \frac{1}{\theta(\log\theta_2 - \log\theta_1)}, \tag{20}$$

en désignant respectivement par θ_2 et θ_1 les constantes de temps correspondant à w'' et w'. Cette loi de répartition, que nous désignerons dans la suite sous le nom de *répartition logarithmique* a été proposée et utilisée avec succès par G. Richter [8] et R. Becker [9] pour rendre compte des résultats expérimentaux relatifs au fer ex-carbonyle.

6. Énergie associée au déplacement d'une paroi. — Supposons maintenant que les variations d'orientation de l'aimantation spontanée, envisagées plus haut, proviennent des déplacements d'une paroi de Bloch plane, parallèle au plan yOz, séparant deux domaines élémentaires d'aimantation uniforme. Repérons la position de cette paroi par l'abscisse u d'un plan convenable, fixe par rapport à la paroi : en général, u est une fonction $u(\tau)$ du temps.

Nous supposerons essentiellement que la paroi conserve au cours de ses déplacements la même épaisseur et la même structure, c'est-à-dire que la direction α, β, γ, de l'aimantation spontanée en un point M (x, y, z) ne dépend que de la distance $x - u$ du point M au plan repère de la paroi. Cette hypothèse n'est sans doute pas rigoureusement exacte, mais doit constituer cependant une bonne approximation, car la structure d'une paroi résulte d'un équilibre entre les forces de Weiss-Heisenberg, correspondant à des énergies de l'ordre de 10^{10} ergs/cm³ pour le fer, et des forces magnétocristallines correspondant à des énergies de l'ordre de $5 \cdot 10^5$ ergs/cm³ : il semble évidemment peu probable que l'énergie de stabilisation, qui n'atteint pas 100 ergs/cm³ soit capable d'altérer cette structure.

On obtient l'énergie associée à un élément de paroi de 1 cm² de surface en intégrant $E_d(\tau)$ dans un cylindre droit de 1 cm² de base et de génératrices perpendiculaires au plan de paroi, c'est-à-dire parallèle à Ox. Or, dans l'expression de $E_d(\tau)$, donnée par l'équation (5), α, β, γ, d'une part et α', β', γ', d'autre part, correspondent respectivement aux directions prises par l'aimantation spontanée lorsque la paroi est située à l'abscisse $u(\tau)$ et lorsqu'elle occupe une position virtuelle arbitraire u', à l'époque t. L'intégrale de $E_d(\tau)$, de $x = -\infty$ à $x = +\infty$, est donc une fonction de la seule variable U :

$$U = u(\tau) - u' \qquad (21)$$

Nous poserons ainsi

$$F(U) = -\frac{1}{W_0}\int_{-\infty}^{+\infty} E_d(\tau)\,dx. \qquad (22)$$

D'après l'équation (18), l'énergie totale associée à un élément de paroi de 1 cm² est donc donnée par

$$E_s(t) = -W_0\int_0^t F(U)\,g(t-\tau)\,d\tau. \qquad (23)$$

Cette énergie est une fonction du déplacement virtuel u'. On déduit du principe des travaux virtuels qu'à l'époque t et à l'abscisse u' la paroi est soumise à une pression P donnée par

$$P = -\frac{\partial E_s}{\partial u'} = \frac{\partial E_s}{\partial U}, \qquad (24)$$

et si nous posons

$$f(U) = \frac{\partial F(U)}{\partial U}, \qquad (25)$$

on peut écrire

$$P = -W_0\int_0^t f(U)\,g(t-\tau)\,d\tau. \qquad (26)$$

En réalité, l'abscisse de la paroi, pour $\tau = t$, est égale à $u(t)$. La pression P subie par la paroi, du fait du traînage créé par la diffusion du carbone, s'obtient donc en donnant à U, dans l'équation (26) la valeur

$$U = u(\tau) - u(t). \qquad (27)$$

Cette pression P est une fonction $P(u, t)$ de la fonction $u(\tau)$ et du temps t.

7. Calcul de $F(U)$ et de $f(U)$. — Avant d'aller plus loin, il importe de calculer les valeurs de $f(U)$ relatives aux deux catégories de parois que l'on rencontre dans le fer : les parois à 90° et les parois à 180°.

A. *Parois à 90°.* — Soit une paroi à 90°, parallèle au plan yOz, séparant deux domaines élémentaires situés, le premier du côté des x négatifs avec une aimantation spontanée parallèle à Oy, et le second du côté des x positifs avec une aimantation spontanée parallèle à Oz. A l'intérieur de la paroi, l'aimantation tourne progressivement de la direction Oy à la direction Oz, tout en restant dans le plan yOz. Soit φ l'angle de l'aimantation spontanée avec Oy et u l'abscisse de la paroi, plus précisément l'abscisse du plan correspondant à $\varphi = \frac{\pi}{4}$. L'angle φ est une fonction de la seule variable $x - u$ donnée [10] par

$$\operatorname{tg}\varphi = \exp\left\{\frac{x-u}{d}\right\}, \qquad (28)$$

avec

$$d = d_0\left(\frac{E}{6K}\right)^{\frac{1}{2}}, \qquad (29)$$

où K est l'énergie magnétocristalline, E l'énergie de champ moléculaire et d_0 la distance entre atomes interagissants magnétiquement. Dans le fer, d est de l'ordre de 165 Å.

Pour les deux positions de la paroi, d'abscisses u et u', on a ainsi

$$Q = \alpha^2\alpha'^2 + \beta^2\beta'^2 + \gamma^2\gamma'^2 = 2\cos^2\varphi\cos^2\varphi' - \cos^2\varphi - \cos^2\varphi' + 1. \qquad (30)$$

Dans la suite, nous pourrons négliger le terme $+1$ du second membre puisque cela revient à ajouter

un terme constant à l'énergie. Posons alors pour abréger

$$a = \exp\left\{-\frac{2u}{d}\right\}, \qquad a' = \exp\left\{-\frac{2u'}{d}\right\}, \qquad (31)$$

et remplaçons $\operatorname{tg}\varphi$ et $\operatorname{tg}\varphi'$ par leurs valeurs déduites de la relation (28). On trouve

$$Q - 1 = \frac{a+a'}{a-a'}\left[\frac{1}{1+a\exp\left(\frac{2x}{d}\right)} - \frac{1}{1+a'\exp\left(\frac{2x}{d}\right)}\right]. \qquad (32)$$

Le second membre s'intégre aisément, de $x = -\infty$ à $x = +\infty$, en effectuant le changement de variable

$$v = 1 + a\exp\left(\frac{2x}{d}\right). \qquad (33)$$

Tous calculs faits, on obtient

$$F(u-u') = \int_{-\infty}^{+\infty}(Q-1)\,\mathrm{d}x = \frac{1}{2}d\frac{a+a'}{a-a'}\log\frac{a'}{a}, \qquad (34)$$

Finalement, en réintroduisant u et u' et en remplaçant $u-u'$ par U, il vient simplement

$$F'(U) = -U\coth\frac{U}{d}, \qquad (35)$$

où l'accent sur $F(U)$ indique simplement qu'il s'agit d'une paroi à 90°. On en déduit immédiatement $f'(U)$, d'après la relation (25).

B. *Parois à* 180°. — Supposons cette fois-ci qu'à l'intérieur de la paroi l'aimantation spontanée tourne, dans le plan yOz, de la direction négative à la direction positive de Oz. Pour une paroi dont le centre est à $x = 0$, la relation entre φ et x est [10], [11], [12]

$$\operatorname{tg}\varphi = g\sinh\frac{x}{d}, \qquad (36)$$

où g est donné par

$$g = \left[\frac{P}{(1+P)}\right]^{\frac{1}{2}}, \qquad (37)$$

avec

$$P = \frac{9}{4}(c_{11} - c_{12})\frac{\lambda_{100}^2}{K}; \qquad (38)$$

c_{11} et c_{12} sont des modules d'élasticité, K la constante d'anisotropie et λ_{100} la magnétostriction longitudinale à saturation suivant l'axe quaternaire. Pour le fer, P est voisin de 2.10^{-3}.

Considérons alors deux parois, situées l'une à l'abscisse $\frac{U}{2}$, l'autre à l'abscisse $-\frac{U}{2}$. Pour ces deux parois, on a

$$\operatorname{tg}\varphi = g\sinh\frac{2x-U}{2d}, \qquad \operatorname{tg}\varphi' = \sinh\frac{2x+U}{2d}. \qquad (39)$$

Comme plus haut, nous intégrons $Q-1$ de $x = -\infty$ à $x = +\infty$. On s'aperçoit alors que les termes en $\cos^2\varphi$ et $\cos^2\varphi'$ donnent des intégrales indépendantes de U qui ne nous intéressent pas ici. D'autre part, en utilisant les valeurs de φ et de φ' données par les équations (39), en développant les sinus hyperboliques et en utilisant les notations,

$$\left.\begin{aligned} &\exp\frac{x}{d} = z^{\frac{1}{2}}, \qquad \exp\frac{U}{d} = a, \\ &\frac{4}{g^2} = A', \qquad \frac{4}{g^2} - 1 = A, \end{aligned}\right\} \qquad (40)$$

on peut écrire, en notant les différentielles par ∂ au lieu de d,

$$2\cos^2\varphi\cos^2\varphi'\,\partial x = \frac{dA'^2a^2z\,\partial z}{(a^2z^2 + Aaz + 1)(z^2 + Aaz + a^2)}, \qquad (41)$$

soit encore

$$2\cos^2\varphi\cos^2\varphi'\,\partial x = \frac{d}{P}\left[\frac{a(a^2+1)z + A}{a^2z^2 + az A + 1} - \frac{\frac{a^2+1}{a}z + Aa^2}{z^2 + Aaz + a^2}\right]\partial z, \qquad (42)$$

avec la notation

$$P = \frac{1}{A'^2}\left(a - \frac{1}{a}\right)\left[\left(a + \frac{1}{a}\right)^2 - A^2\right]. \qquad (43)$$

Il faut ensuite intégrer de $z = 0$ à $z = +\infty$, mais les deux termes de la relation (42) sont alors infinis. On intégre donc chaque terme jusqu'à N, on fait la différence et l'on fait tendre N vers l'infini. Pour ces intégrations, il suffit de faire les changements de variables $az = t$ et $z = at$ pour aboutir à des intégrales classiques.

Tous calculs faits, on obtient

$$F''(U) = 2d\cosh^2 V\frac{\frac{U}{d}\coth\frac{U}{d} - V\coth V}{\cosh^2\frac{U}{d} - \cosh^2 V}, \qquad (44)$$

avec la notation

$$\cosh V = \frac{2}{g^2} \qquad (45)$$

et où le double accent sur $F(U)$ indique simplement qu'il s'agit d'une paroi à 180°.

Avec la valeur de g indiquée plus haut, le rapport $\frac{\cosh\frac{2U}{d}}{\cosh^2 V}$ est négligeable devant l'unité quand $\frac{U}{d}$ est inférieur à 4 : à une constante près, $F''(U)$ se réduit alors à $-2U\coth\frac{U}{d}$, soit au double de l'énergie d'une paroi à 90°.

Enfin, $f''(U)$ se calcule en appliquant la relation (25).

8. **Allure de la variation de $f(U)$ avec U.** — Remarquons d'abord que $F(U)$ est une fonction paire de U et $f(U)$ une fonction impaire. Lorsque U est petit devant d, les formules précédentes permettent de développer $f(U)$ en série et donnent, en ce qui concerne une paroi à 90°,

$$f'(U) = -\frac{2U}{3d} + \frac{4U^3}{45d^3} + \dots \quad (46)$$

Pour une paroi à 190°, $f''(U)$ est presqu'exactement égal au double de la valeur précédente.

Lorsque U tend vers l'infini positif, $-f'(U)$ tend vers l'unité et $-f''(U)$ tend vers zéro. Le tableau I donne, pour fixer les idées, les valeurs de $f(U)$ dans les deux cas considérés; pour les parois à 180°, on a adopté la valeur $g^2 = 2.10^{-3}$.

TABLEAU I.

$\frac{U}{d}$.	$-f'(U)$. (paroi à 90°).	$-\frac{1}{2}f''(U)$ (paroi à 180°).
0,5	0,323	0,323
1	0,589	0,589
1,5	0,774	0,774
2	0,885	0,885
2,5	0,945	0,945
3	0,975	0,975
3,5	0,989	0,989
4	0,995	0,995
4,5	0,998	0,996
5	0,999	0,98
5,5	1,000	0,95
6	–	0,90
6,5	–	0,81
7	–	0,67
7,5	–	0,53
8	–	0,39
8,5	–	0,245
9	–	0,125
9,5	–	0,062
10	–	0,031

La figure 2 donne, pour une paroi à 180°, la variation de $-\frac{1}{2}f''(U)$ en fonction de $\frac{U}{d}$. La courbe accuse un méplat assez accentué au voisinage de $\frac{U}{d} = 4$. Pour les parois à 90°, $-f'(U)$ est pratiquement représenté par la courbe précédente jusqu'à $\frac{U}{d} = 4$; plus loin, $-f'(U)$ est pratiquement égal à l'unité.

9. **État initial et mouvement d'une paroi.** — La formule (26) donne la pression $P(u, t)$ subie par une paroi, du fait de la redistribution des atomes de carbone, à une époque t, connaissant la position $u(\tau)$ de la paroi aux époques antérieures et en supposant les atomes de carbone également distribués sur tous les sites à l'époque initiale $\tau = 0$.

Pour réaliser cette distribution initiale, on peut procéder à une désaimantation dans un champ alternatif décroissant. En chaque point, l'aimantation spontanée prend au cours de ce processus des orientations très variées de sorte que, les valeurs moyennes de α^2, β^2, γ^2 étant égales pendant la durée de la désaimantation, les atomes de carbone doivent se distribuer également sur les sites x, y et z. Cependant, il semble nécessaire, pour que ce mécanisme soit efficace, que la durée totale de la désaimantation soit d'une grandeur comparable à la plus grande des constantes de temps θ. Or, ce n'est généralement pas le cas : la durée de la désaimantation n'est que de quelques minutes, tandis que θ atteint souvent plusieurs heures ou plusieurs jours. La désaimantation en courant alternatif décroissant paraît pourtant donner

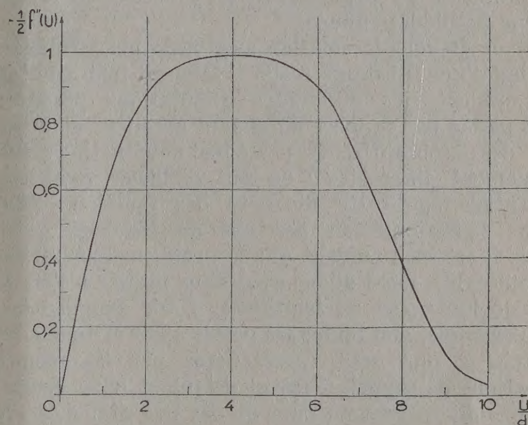


Fig. 2. — Variation de $-\frac{1}{2}f(U)$ en fonction de $\frac{U}{d}$, pour une paroi à 180°.

de bons résultats de ce point de vue : elle doit donc agir suivant un autre mécanisme, comme par exemple le suivant. Elle provoquerait une redistribution complète des domaines élémentaires de Weiss à l'intérieur de la substance qui occuperaient ainsi, après désaimantation, des positions entièrement différentes et sans aucun rapport avec les positions antérieures. Dans ces conditions, l'égalité de distribution du carbone sur les sites serait réalisée *en moyenne* à l'intérieur de chaque domaine et les propriétés du système ne devraient pas différer beaucoup de ce qu'elles seraient si l'égalité de distribution était effectivement réalisée en chaque point.

Supposons donc cette égalité de distribution des atomes de carbone réalisée à l'instant $\tau = 0$. Pour déterminer le mouvement de la paroi à partir de cette époque, sous l'influence d'un champ magnétique appliqué H, éventuellement fonction du temps, il faut écrire qu'à chaque instant la somme algébrique des pressions subies par la paroi est nulle. En dehors de la pression de traînage magnétique $P(u, t)$, il faut tenir compte, d'une part, de

la pression magnétique, égale au produit scalaire $\vec{H}(\vec{J}_1 - \vec{J}_2)$ du champ appliqué par la différence des aimantations spontanées J_1 et J_2 des deux domaines adjacents à la paroi et, d'autre part, de la pression $R(u)$ qui rappelle la paroi dans sa position d'équilibre et qui ne dépend que de l'abscisse actuelle u de la paroi : cette pression de rappel est liée aux différentes perturbations du réseau cristallin, tensions internes, dislocations, etc. Finalement, l'équation d'équilibre s'écrit

$$R(u) + \vec{H}(t)\left(\vec{J}_1 - \vec{J}_2\right) + P(u, t) = 0. \qquad (47)$$

C'èst une équation intégrale qui résoud en principe le problème du déplacement en fonction du temps d'*une* paroi déterminée.

Pour étendre la solution aux variations d'aimantation d'une substance réelle, il faudrait tenir compte notamment des différentes orientations possibles des parois par rapport au champ extérieur et de ce que des parois différentes possèdent des fonctions $R(u)$ également différentes : on sait d'ailleurs quel rôle essentiel joue cette diversité des fonctions $R(u)$ dans l'interprétation des lois de Rayleigh [13]. Mais il est bien évident que le problème général est inextricable, aussi allons-nous nous limiter à l'étude de quelques cas schématiques. Nous supposerons, par exemple, que toutes les parois à 90° et toutes les parois à 180° sont caractérisées par les mêmes fonctions de rappel $R'(u)$ et $R''(u)$ et nous examinerons ultérieurement dans un cas très simple (§ 17) l'influence de la dispersion de ces fonctions.

Nous supposerons aussi que toutes les parois d'orientations diverses, contenues dans 1 cm³ de l'échantillon étudié peuvent être remplacées par deux parois fictives, l'une à 90° de surface S', l'autre à 180° de surface S''. Nous donnerons à ces deux parois les orientations définies dans le paragraphe 7 et nous appliquerons le champ extérieur $H(t)$ suivant Oy : la pression magnétique est alors égale à $J_s H(t)$ pour la paroi à 90° et à $2 J_s H(t)$ pour la paroi à 180°, en désignant par J_s l'aimantation spontanée.

La variation J de la composante suivant Oy de l'aimantation macroscopique peut donc être considérée comme la somme de deux termes J' et J'', liés aux déplacements u' et u'' des deux parois par les relations

$$J' = J_s u' S' \qquad \text{et} \qquad J'' = 2 J_s u'' S''. \qquad (48)$$

Il est, d'autre part, parfois commode de se représenter les pressions de traînage par des champs magnétiques fictifs équivalents : les champs de traînage $H'(u', t)$ et $H''(u'', t)$ définis par

$$H'(u', t) = \frac{P'(u', t)}{J_s} \qquad \text{et} \qquad H''(u'', t) = \frac{P''(u'', t)}{2 J_s}. \qquad (49)$$

10. **Variation avec le temps de la susceptibilité.** — Après une désaimantation effectuée à l'époque $\tau = 0$, maintenons nul le champ magnétique jusqu'à l'époque t à laquelle nous effectuons une mesure de susceptibilité par une méthode balistique, en appliquant un champ H. Supposons d'abord que le temps d'indication de l'appareil de mesure utilisé soit petit devant les constantes de temps θ du traînage. Dans ces conditions, $u(\tau)$ est nul dans l'intervalle de temps $0 < \tau < t$ et $u(t)$ représente simplement la position de la paroi aussitôt après l'application du champ. La variable U se réduit donc à $-u(t)$ et $f(U)$ est indépendant de τ. Posons maintenant

$$\int_0^t g(t - \tau)\,\mathrm{d}\tau = G(t). \qquad (50)$$

Compte tenu de la relation (19) qui définit $g(t - \tau)$, on déduit que $G(t)$, égal à zéro pour $t = 0$, est une fonction toujours croissante de t et tend vers l'unité quand t tend vers l'infini. Par exemple, avec une seule constante de temps, on trouve

$$G(t) = 1 - e^{-\frac{t}{\theta}}. \qquad (51)$$

Les relations (59) et (62), établies plus loin, donnent $G(t)$ dans le cas logarithmique.

La pression magnétique qui agit sur la paroi s'écrit alors

$$P(u, t) = W_0 f(u) G(t), \qquad (52)$$

de sorte que l'équation d'équilibre, relative à une paroi à 90°, s'écrit, compte tenu de la relation (48) qui lie u' à J',

$$R'\left(\frac{J'}{S' J_s}\right) + H J_s = -W_0 f'\left(\frac{J'}{S' J_s}\right) G(t), \qquad (53)$$

ainsi qu'une relation analogue pour les parois à 180°.

Il résulte de cette équation que la susceptibilité $\frac{J'}{H}$ diminue à mesure que l'intervalle de temps t, écoulé depuis la désaimantation, augmente : ainsi interprète-t-on le phénomène connu sous le nom de *désaccommodation* de la perméabilité. L'équation (53) prend une forme simple lorsque H et par conséquent J' sont petits. Dans ce cas, on peut réduire R' et f' au premier terme de leur développement en série, ce qui donne

$$-\frac{J' J_s}{\chi'_0} + J_s H = \frac{2 W_0 J'}{3 S' J_s d} G(t), \qquad (54)$$

où χ'_0 est la susceptibilité initiale relative aux parois à 90°, en l'absence de traînage. Il résulte de cette équation que tout se passe dans les champs faibles comme si le traînage magnétique équivalait à un champ démagnétisant interne $-N' J'$, proportionnel à l'aimantation, défini par un coefficient

$$N' = \frac{2 W_0 G(t)}{3 S' J_s^2 d}, \qquad (55)$$

pour les parois à 90°. Pour les parois à 180°, on obtient un résultat analogue avec un coefficient N'' de champ démagnétisant donné par la formule (55), où S' est simplement remplacé par $2S''$.

Dans les champs plus intenses, où le déplacement u des parois dépasse $4d$ pour les parois à 90° et $10d$ pour les parois à 180°, $f(U)$ se réduit à -1 pour les premières et à 0 pour les secondes. Pour les parois à 90°, tout se passe comme si la substance était soumise à un champ supplémentaire fictif H' donné par

$$H' = -\frac{W_0\,G(t)}{J_s}. \tag{56}$$

Il est intéressant de remarquer que ce champ supplémentaire ne dépend, ni du champ appliqué, ni de la forme de la pression de rappel $R(u)$. Pour les parois à 180°, les effets de la diffusion du carbone sur la susceptibilité disparaissent lorsque u dépasse $10\,d$. En principe, l'étude du traînage en fonction du champ permet donc de séparer le rôle des parois à 90° du rôle des parois à 180°.

Nous avons montré antérieurement ([1], § 7 et 8, *fig.* 7 et 8) que les expériences de G. Richter, ainsi que celles de J. L. Snoek s'interprétaient d'une manière très satisfaisante par la théorie que nous venons de développer.

11. Méthode générale d'approximation. — L'exemple que nous venons d'étudier constitue un des cas exceptionnels où l'équation intégrale (47) dégénère et peut se résoudre d'une manière simple et rigoureuse. Les affaires se compliquent déjà lorsque le temps d'indication de l'appareil de mesure est voisin ou plus grand que quelques-unes des constantes de temps θ de traînage.

Dans ce cas et dans plusieurs autres qui seront étudiés plus loin, la méthode d'approximation suivante fournit des résultats simples : on considère le traînage comme une *petite* perturbation et l'on suppose que, dans l'expression de U [*cf.* (27)], la différence entre la position réelle de la paroi et la position qu'elle occuperait au même instant en l'absence de traînage est suffisamment petite pour que l'on puisse la négliger. Ainsi, dans cette hypothèse, les valeurs $u(\tau)$ et $u(t)$, qui figurent dans U, se rapportent aux positions qu'occuperait la paroi aux époques τ et t, *en l'absence de trainage*, sous l'action des champs $H(\tau)$ et $H(t)$. Le problème se simplifie alors beaucoup, car il n'y a plus de fonction inconnue $u(\tau)$ sous le signe somme.

Cette méthode fournit une première valeur approchée $u_1(\tau)$ de la position de la paroi qui suffit dans beaucoup de cas. Mais, si l'on désirait une meilleure approximation, on pourrait utiliser ces valeurs $u_1(\tau)$ pour obtenir une meilleure valeur de U et en déduire une deuxième approximation $u_2(\tau)$ et ainsi de suite.

Appliquons cette méthode au calcul de la position de la paroi à l'époque $t = t_1 + \varepsilon$, où t_1 désigne l'époque où le champ H constant a été appliqué, après être resté nul dans l'intervalle $0 < \tau < t_1$. Cette position est, par exemple, celle que l'on calcule d'après la valeur de l'élongation maximum d'un galvanomètre balistique : ε est alors voisin du quart de la période de cet appareil. En l'absence de traînage, la paroi reste au repos à l'origine jusqu'à $\tau = t_1$, de sorte que U est simplement égal à $-u(t)$. Ensuite, la paroi reste immobile dans l'intervalle $t_1 < \tau < t_1 + \varepsilon$: U est donc nul en première approximation. La pression P est donc donnée par

$$\begin{aligned} P &= -W_0 f(-u)\int_0^{t-\varepsilon} g(t-\tau)\,d\tau \\ &= W_0 f(u)[G(t) - G(\varepsilon)], \end{aligned} \tag{57}$$

compte tenu de la définition de $G(t)$ donnée par la relation (50). L'équation (57) se substitue à l'équation (52) : il suffit donc de remplacer $G(t)$ par $G(t) - G(\varepsilon)$ dans les équations (53) à (56) pour résoudre le problème dans l'éventualité où ε n'est plus négligeable devant toutes les valeurs de θ.

Particularisons, par exemple, la formule (57) au cas logarithmique de répartition des constantes de temps, défini par les formules (19) et (20). Par définition,

$$\begin{aligned} G(t) &= \int_0^t g(t-\tau)\,d\tau \\ &= \int_0^t \int_{\theta_1}^{\theta_2} \frac{e^{\frac{\tau - t}{\theta}}}{\log\theta_2 - \log\theta_1}\,\frac{d\tau\,d\theta}{\theta^2}, \end{aligned} \tag{58}$$

et en intégrant d'abord par rapport à τ et ensuite par rapport à θ on obtient

$$\begin{aligned} G(t) &= \int_{\theta_1}^{\theta_2} \frac{1 - e^{-\frac{t}{\theta}}}{\log\theta_2 - \log\theta_1}\,\frac{d\theta}{\theta} \\ &= 1 + \frac{1}{\log\frac{\theta_2}{\theta_1}}\left[Ei\left(-\frac{\theta_2}{t}\right) - Ei\left(-\frac{\theta_1}{t}\right)\right]. \end{aligned} \tag{59}$$

Quand $\theta_1 \ll t \ll \theta_2$, on peut utiliser les formules asymptotiques de développement des exponentielles intégrales $Ei(-x)$, soit

$$Ei(-x) = C + \log x - x + \frac{1}{2}\frac{x^2}{2!} - \frac{1}{3}\frac{x^3}{3!} + \ldots, \quad |x| < 17, \tag{60}$$

$$Ei(-x) = -\frac{e^{-x}}{x}\left(1 - \frac{1!}{x} + \frac{2!}{x^2} - \frac{3!}{x^3} + \ldots\right), \quad |x| > 17, \tag{61}$$

où C est la constante d'Euler, égale à 0,5772. On obtient alors

$$G(t) = 1 - \frac{C + \log\theta_1 - \log t}{\log\theta_2 - \log\theta_1}. \tag{62}$$

Si $\theta_1 \ll \varepsilon \ll \theta_2$, on obtient $G(\varepsilon)$ en remplaçant t

par ε dans l'équation précédente, ce qui donne finalement

$$G(t) - G(\varepsilon) = \frac{\log t - \log \varepsilon}{\log \theta_2 - \log \theta_1}. \qquad (63)$$

12. **Évolution de l'aimantation au cours du temps.** — On peut aussi imaginer un autre type d'expérience dans lequel, après avoir désaimanté à $\tau = 0$, on maintient nul le champ magnétique jusqu'à l'époque t_1. On applique alors un champ constant H et l'on suit l'évolution de l'aimantation en fonction du temps. Une telle expérience met en évidence le *traînage magnétique* proprement dit, tandis que l'expérience du paragraphe 10 se rapportait suivant la terminologie de Snoek, à la désaccommodation de la perméabilité.

En somme, ce problème a déjà été traité dans le paragraphe précédent : il suffit de remplacer ε par $t - t_1$. Les formules (53) à (56) s'appliquent en y remplaçant $G(t)$ par $G(t) - G(t - t_1)$, ce qui met bien en évidence les relations étroites qui lient la désaccommodation au traînage. Dans le cas logarithmique, l'aimantation est une fonction du temps de la forme $A + B \log t$, tout au moins dans l'intervalle $\theta_1 \ll t \ll \theta_2$: nous avons déjà rencontré une relation de cette forme dans le cas du traînage irréversible, ou traînage de fluctuations thermiques. Lorsque l'aimantation présente cette allure, on ne peut donc rien en conclure quant à l'origine du traînage.

La méthode du paragraphe précédent permet de traiter des cas plus compliqués. Désaimantons, par exemple, la substance à $\tau = 0$, puis appliquons un champ H_0 dans l'intervalle $0 < \tau < t_1$, un champ H_1 dans l'intervalle $t_1 < \tau < t_2$ et finalement un champ H_2 depuis l'époque t_2 jusqu'à l'époque t de l'observation. Désignons par u_0, u_1, u_2 les positions successives de la paroi correspondant, en l'absence de traînage, aux champs H_0, H_1, H_2. A l'approximation utilisée, u_2 est d'ailleurs égal à l'abscisse réelle de la paroi à l'instant t. Il en résulte que la variable U est égale à $u_0 - u_2$ dans l'intervalle $0 < \tau < t_1$, à $u_1 - u_2$ dans l'intervalle $t_1 < \tau < t_2$ et à zéro pour $\tau > t_2$. La pression magnétique P, à l'instant t, définie par l'équation (26) s'écrit, compte tenu de la relation (50),

$$-\frac{P}{W_0} = f(u_0 - u_2)\int_0^{t_1} g(t - \tau)\,d\tau + f(u_1 - u_2)\int_{t_1}^{t_2} g(t - \tau)\,d\tau, \qquad (64)$$

ou encore

$$-\frac{P}{W_0} = f(u_0 - u_2)[G(t) - G(t - t_1)] + f(u_1 - u_2)[G(t - t_1) - G(t - t_2)]. \quad (65)$$

Cette formule se généralise aisément à des cas plus compliqués. Elle est d'ailleurs susceptible d'importantes simplifications, soit dans le cas où les différences $u_0 - u_2$, $u_1 - u_2$ sont petites à côté de d, soit dans le cas où elles sont grandes : dans le premier cas, $f'(U)$ ou $f''(U)$ se réduisent à $-\frac{2U}{3d}$ ou $-\frac{4U}{3d}$, dans le second, $f''(U)$ se réduit à zéro et $f'(U)$ se réduit à -1 ou à $+1$, suivant que U est positif ou négatif.

13. **Traînage normal et traînage anomal.** — Lorsque après désaimantation à $\tau = 0$, on applique un champ H à $\tau = t$ et que l'on suit ensuite l'évolution de l'aimantation à champ constant, la pression de traînage P reste égale à $W_0 f(u)[G(t) - G(t - t_1)]$. Lorsqu'il n'existe qu'une seule constante de temps θ de traînage, le crochet se réduit à $e^{-\frac{t}{\theta}}\left(e^{\frac{t_1}{\theta}} - 1\right)$. C'est une quantité toujours positive qui décroît d'une manière monotone vers zéro quand le temps t tend vers l'infini. Il en est évidemment de même dans le cas où un nombre quelconque de constantes de temps se superposent. Comme u et $W_0 f(u)$ sont de signes contraires, la pression magnétique P doit toujours s'opposer au déplacement de la paroi et tend vers zéro d'une manière monotone quand t tend vers l'infini : le traînage magnétique se produit donc dans le même sens que la variation de l'aimantation qui le précède immédiatement. Il n'y a jamais changement de signe : c'est le *traînage normal*.

Prenons maintenant un cas plus compliqué, tel que celui qui fait l'objet de la formule (65). Pour fixer les idées, prenons d'abord H_0 nul, puis donnons au champ H_1, une valeur positive et revenons finalement à un champ H_2, plus petit que H_1 mais toujours positif, ces champs ayant des valeurs relatives telles que u_2 et $u_1 - u_2$, qui sont tous deux positifs, soient grands devant d. Adoptons enfin l'hypothèse logarithmique en supposant que t, $t - t_1$, $t - t_2$, soient grands devant θ_1 et petits devant θ_2. Aucune de ces différentes hypothèses n'est d'ailleurs essentielle et nous ne les avons introduites que dans le but de simplifier l'exposé et les calculs : nous aurions obtenu, dans les autres cas, des résultats analogues à ceux qui vont suivre.

La pression magnétique P, déterminée d'après les équations (63) et (65), s'écrit alors

$$P = \frac{W_0}{\log \theta_2 - \log \theta_1} \log \frac{(t - t_1)^2}{t(t - t_2)}, \qquad (66)$$

de sorte qu'elle varie avec le temps dans le même sens que

$$Y = \frac{(t - t_1)^2}{t(t - t_2)}. \qquad (67)$$

L'étude de la dérivée montre que lorsque t_2 est supérieur à $2t_1$, la quantité Y décroît toujours à mesure que t augmente et tend vers 1 pour t infini. Ainsi le traînage magnétique se produit dans le même

sens que la variation imposée de l'aimantation qui l'a immédiatement précédé, à condition que l'état antécédent, en l'espèce ici l'action du champ H_1, ait été maintenu plus longtemps que l'action du champ H_0.

Lorsque t_2 est inférieur à $2t_1$, Y commence par décroître jusqu'à ce que t atteigne la valeur $\frac{t_1 t_2}{2t_1 - t_2}$, puis croît en tendant vers 1 lorsque t tend vers l'infini. Ainsi lorsque l'état antécédent n'a pas été maintenu longtemps, l'échantillon conserve le souvenir d'un état plus éloigné et le traînage finit par se produire dans le sens de l'avant-dernière variation imposée de l'aimantation. Cependant, pendant un petit intervalle de temps suivant immédiatement l'application du champ final, le traînage présente le sens normal. En résumé, le traînage change de signe à l'époque $\frac{t_1 t_2}{2t_1 - t_2}$. C'est le *traînage anomal* dont les expériences de A. Mitkewitch [14] fournissent de beaux exemples : les caractéristiques essentielles du phénomène paraissent convenablement interprétées par la théorie exposée plus haut.

14. Le traînage en champ alternatif. Le cas des petites amplitudes. — Un grand nombre d'études sur la désaccommodation de la perméabilité ont été effectuées en courant alternatif. Il convient donc d'examiner cette question du point de vue théorique. Après avoir désaimanté à l'époque $\tau = 0$, nous laissons d'abord le champ nul jusqu'à l'époque $\tau = t_1$ à laquelle nous appliquons un champ magnétique

$$H = H_m \sin \omega t, \tag{68}$$

d'amplitude constante auquel correspondrait, en l'absence de traînage, un déplacement u de paroi donné par

$$u = u_0 \sin \omega t \tag{69}$$

que nous supposerons petit vis-à-vis de d. Avec la méthode d'approximation du paragraphe 11, la variable U prend alors la valeur $-u_0 \sin \omega t$ dans l'intervalle $0 < \tau < t_1$ et et la valeur $-u_0(\sin \omega t - \sin \omega \tau)$ dans l'intervalle $t_1 < \tau < t$. En se limitant au premier terme du développement de $f'(U)$, la pression magnétique, relative à une paroi à 90° et au cas où il n'existe qu'une seule constante de temps, s'écrit

$$\begin{aligned}\frac{3Pd}{2W_0} = &-\int_0^{t_1} u_0 \sin \omega t \, e^{-\frac{t-\tau}{\theta}} \frac{d\tau}{\theta} \\ &+ \int_{t_1}^{t} u_0(\sin \omega\tau - \sin \omega t)\, e^{-\frac{t-\tau}{\theta}} \frac{d\tau}{\theta},\end{aligned} \tag{70}$$

ce qui donne, après intégration :

$$\begin{aligned}\frac{3Pd}{2W_0 u_0} = &-\left(\frac{\omega^2\theta^2}{1+\omega^2\theta^2} - e^{-\frac{t}{\theta}}\right)\sin \omega t \\ &- \frac{\omega\theta}{1+\omega^2\theta^2}\cos \omega t \\ &- (\sin \omega t_1 - \omega\theta \cos \omega t_1)\,\frac{e^{-\frac{t-t_1}{\theta}}}{1+\omega^2\theta^2}.\end{aligned} \tag{71}$$

Le dernier terme ne présente pas grand intérêt : c'est un terme transitoire, non périodique, qui dépend de la phase du courant à l'instant t_1 et qui n'affecte pas les mesures en courant alternatif. Le terme en $\sin \omega t$ est en opposition de phase avec le champ H. Lorsque la période $\frac{2\pi}{\omega}$ du champ alternatif est petite devant θ, ce terme est sensiblement égal à $-\left(1 - e^{-\frac{t}{\theta}}\right)\sin \omega t$ et montre que, lorsque l'espace de temps t, qui s'est écoulé depuis la désaimantation, croît de zéro à l'infini, tout se passe comme si le système était soumis à un champ magnétique fictif alternatif, en opposition de phase avec le champ appliqué et d'intensité croissant de zéro à $\frac{2W_0 u_0}{3\,dJ_s}$. Ce champ fictif ne dépend pas de l'époque t_1 où le champ $H_m \sin \omega t$ a été appliqué.

Le terme en $\cos \omega t$ est en quadrature avec le champ appliqué. Il en résulte que u, c'est-à-dire en fin de compte l'aimantation, présente un retard de phase ε sur le champ appliqué, d'où dissipation d'énergie. Cet angle de phase est donné par

$$\varepsilon = \frac{\varepsilon_0 \omega\theta}{1+\omega^2\theta^2}, \tag{72}$$

avec

$$\varepsilon_0 = \frac{2W_0 u_0}{3\,dJ_s H_0} = \frac{2W_0 \chi'_0}{3\,dS' J_s^2} \tag{73}$$

en mettant en évidence la susceptibilité initiale χ_0 du système en l'absence de traînage.

Dans le cas logarithmique, lorsque les constantes de temps sont dispersées entre θ_1 et θ_2, on trouve

$$\begin{aligned}\varepsilon &= \frac{\varepsilon_0}{\log\theta_2 - \log\theta_1}\int_{\theta_1}^{\theta_2}\frac{\omega\theta}{1+\omega^2\theta^2}\frac{d\theta}{\theta} \\ &= \varepsilon_0\,\frac{\operatorname{arctg}\omega\theta_2 - \operatorname{arctg}\omega\theta_1}{\log\theta_2 - \log\theta_1}\end{aligned} \tag{74}$$

et si θ_1 et θ_2 sont respectivement très petit et très grand devant $\frac{2\pi}{\omega}$, l'angle de perte prend la valeur

$$\varepsilon = \frac{\pi\varepsilon_0}{2(\log\theta_2 - \log\theta_1)} = \frac{\pi k T \varepsilon_0}{2(W'' - W')}, \tag{75}$$

d'après l'équation (20). Cet angle de perte ne dépend, ni du champ, ni de la fréquence du champ alternatif de mesure; il ne dépend pas non plus du temps écoulé depuis la désaimantation ou depuis l'époque d'application du champ de mesure. Les pertes d'énergie correspondantes présentent donc les caractéristiques essentielles des *pertes résiduelles*, mises pour la première fois en évidence par Jordan [15]. Ces caractères proviennent uniquement de la dispersion des constantes de temps et se retrouvent également dans le traînage dû aux fluctuations thermiques [2], comme nous l'avons montré antérieurement. Ce n'est donc pas plus sur ces caractères que sur la variation logarithmique de l'aimantation avec le temps qu'il est possible de fonder une dis-

tinction entre le traînage de diffusion et le traînage de fluctuations.

L'angle de phase ε dépend de la température d'une manière qui, pour n'être pas exponentielle, peut néanmoins être assez sensible : la température T figure explicitement dans la formule (75), tandis que χ'_0 dépend de ε_0 et de W_0 qui a leur tour, et surtout cette dernière quantité, varient avec T. Il est donc impossible *a priori* de préciser le sens de la variation résultante de ε.

15. **Le traînage en champ alternatif. Cas des grandes amplitudes.** — Lorsque l'amplitude u est grande vis-à-vis de d, et en utilisant la même approximation que plus haut, l'équation (26) donnant la pression magnétique, pour une paroi à 90° et pour une seule constante de temps θ, s'écrit sous la forme suivante :

$$\frac{P}{W_0} = \int_0^{t_1} \eta \exp\left(\frac{\tau - t}{\theta}\right)\frac{d\tau}{\theta} + \int_{t_1}^{t} \eta' \exp\left(\frac{\tau - t}{\theta}\right)\frac{d\tau}{\theta}; \quad (76)$$

où η est égal à -1 ou à $+1$, selon que $u_0 \sin \omega t$ est positif ou négatif et où η' est égal à -1 ou à $+1$, suivant que $u_0(\sin \omega t - \sin \omega\tau)$ est positif ou négatif.

La première des intégrales (76), que nous désignons par I_1, est égale à $\eta\left[\exp\left(-\frac{t-t_1}{\theta}\right) - \exp\left(-\frac{t}{\theta}\right)\right]$ et en développant η en série de Fourier, on obtient

$$I_1 = -\frac{4}{\pi}\left(e^{-\frac{t-t_1}{\theta}} - e^{-\frac{t}{\theta}}\right)\left(\sin \omega t + \frac{1}{3}\sin 3\omega t + \ldots\right). \quad (77)$$

Il est commode de calculer par morceaux la deuxième intégrale I_2 de l'équation (76). Posons, en général,

$$\omega t = k\pi + \varphi,$$

où k est un entier et φ inférieur en module à $\frac{\pi}{2}$. Il convient alors de distinguer deux cas, suivant que k est pair ou impair. Posons, en outre,

$$Q = \exp\left(-\frac{\pi}{\omega\theta}\right), \qquad Q' = \exp\left(-\frac{2\varphi}{\omega\theta}\right). \quad (78)$$

Dans ces conditions, la portion p de I_2, relative à l'intervalle d'intégration $t - \frac{2\pi}{\omega} < \tau < t$, s'écrit

$$p = \eta''(1 - 2QQ' + Q^2), \quad (79)$$

où η'' est égal à -1 ou $+1$, suivant que k est pair ou impair. D'autre part, les portions de I_2, relatives aux intervalles d'intégration compris, entre $t - \frac{4\pi}{\omega}$ et $t - \frac{2\pi}{\omega}$; entre $t - \frac{6\pi}{\omega}$ et $t - \frac{4\pi}{\omega}$, etc. sont les termes successifs d'une progression géométrique de raison Q^2, dont le premier terme est égal à p et dont le nombre de termes est égal à $\frac{(t-t_1)\omega}{2\pi}$. Cela donne au total

$$I_2 = \frac{p}{1 - Q^2}\left(1 - e^{-\frac{t-t_1}{\theta}}\right). \quad (80)$$

Mais $\frac{p}{(1-Q^2)}$ est une fonction périodique de φ (et non pas de t) susceptible d'être développée en série de Fourier, ce qui donne, après avoir remplacé φ par ωt,

$$\frac{p}{1-Q^2} = -\frac{4}{\pi}\coth\frac{\pi}{\omega\theta}\left[\frac{2\omega\theta}{4+\omega^2\theta^2}\sin\omega t + \frac{4}{4+\omega^2\theta^2}\cos\omega t - \ldots - \frac{2\omega\theta}{4+9\omega^2\theta^2}\sin 3\omega t \; \frac{4}{12+27\omega^2\theta^2}\cos 3\omega t + \ldots\right]. \quad (81)$$

Finalement, en reportant cette valeur dans l'expression (80) et en ajoutant la valeur de I_2 ainsi obtenue à la valeur de I_1 donnée par la relation (77), on obtient $\frac{P}{W_0}$ sous la forme de termes périodiques de pulsation ω, 3ω, ... exponentiellement amortis. Le cas le plus intéressant est celui où la période $\frac{2\pi}{\omega}$ du champ alternatif est petite devant θ; on obtient alors en se limitant aux termes en $\sin \omega t$ et $\cos \omega t$ et en négligeant l'unité devant $(\omega\theta)^2$:

$$\frac{P}{W_0} = -\frac{4}{\pi}\left[\left(1 - \frac{2}{\pi}\right)e^{-\frac{t-t_1}{\theta}} - e^{-\frac{t}{\theta}} + \frac{2}{\pi}\right]\sin\omega t - \frac{16}{\pi^2\omega\theta}\left(1 - e^{-\frac{t-t_1}{\theta}}\right)\cos\omega t. \quad (82)$$

Malgré toutes les simplifications que nous avons apportées, cette formule possède une structure encore beaucoup plus compliquée que la formule correspondante (71) relative aux petites amplitudes. Il en résulte notamment que les répercussions du traînage sur les mesures en courant alternatif sont plus délicates à interpréter que lorsqu'il s'agit de variations discontinues du champ appliqué.

En ce qui concerne, par exemple, le terme en $\cos \omega t$ qui représente la partie de la pression de traînage qui est en quadrature avec le champ appliqué, on remarque qu'il dépend maintenant de $t - t_1$, c'est-à-dire de la durée de l'intervalle de temps écoulé entre l'application du champ et la mesure : en particulier, ce terme est nul au moment de l'application du champ. Il ne semble pas que la variation correspondante de l'angle de perte ait été signalée expérimentalement jusqu'ici. On remarque, en outre, que l'amplitude de la pression de traînage ne dépend pas de l'amplitude H_m du champ appliqué : l'angle de perte doit varier en raison inverse de H_m. Ce

phénomène non plus n'a pas été signalé : peut-être serait-il difficile à mettre en évidence, en présence d'angles de perte d'origine différente, augmentant avec le champ, comme pour l'hystérésis.

On peut faire des remarques analogues en ce qui concerne la partie de la pression de traînage qui varie en opposition de phase avec le champ appliqué. Nous allons traiter un exemple intéressant.

16. **Variation avec le temps de la perméabilité en courant alternatif.** — La formule (82) relative à une seule constante de temps peut s'étendre au cas logarithmique. On trouve

$$= -\frac{4}{\pi}\int_{\theta_1}^{\theta_2}\left[\left(1-\frac{2}{\pi}\right)e^{-\frac{t-t_1}{\theta}} - e^{-\frac{t}{\theta}} + \frac{2}{\pi}\right]\frac{\sin\omega t\, d\theta}{\theta(\log\theta_2-\log\theta_1)} + \dots \quad (83)$$

Lorsque les deux inégalités

$$\theta_1 \ll t \ll \theta_2 \quad \text{et} \quad \theta_1 \ll t - t_1 \ll \theta_2$$

sont satisfaites, la période $\frac{2\pi}{\omega}$ étant, en outre, petite devant θ, l'application des formules (59), (60) et (61) permet de donner à la relation (83) la forme

$$\frac{\dot P}{W_0} = -\frac{4\sin\omega t}{\pi} \times\left\{\frac{2}{\pi}\left(1-\frac{C+\log\theta_1}{\log\theta_2-\log\theta_1}\right)+\frac{1}{\log\theta_2-\log\theta_1} \times\left[\log t-\left(1-\frac{2}{\pi}\right)\log(t-t_1)\right]\right\}. \quad (84)$$

La première partie de la parenthèse est un terme indépendant du temps qui ne présente pas d'intérêt pour nous. Il n'en est pas de même du second. Supposons d'abord que t_1 soit nul. Le terme entre crochets se réduit alors à $\frac{2}{\pi}\log t$: l'amplitude de la pression magnétique croît donc toujours avec le temps. Il en résulte que, si l'on mesure la perméabilité en courant alternatif en appliquant le champ de mesure aussitôt après la désaimantation et en laissant agir ce champ sans interruption, on observe que la perméabilité décroît toujours avec le temps, comme le montre la courbe A de la figure 3, tracée en coordonnées arbitraires.

Supposons, au contraire, que le champ de mesure soit seulement appliqué à une époque t_1 après la désaimantation, puis maintenu. Le terme entre crochets, dans la relation (84), commence par décroître, passe par un minimum pour $t = \frac{\pi t_1}{2}$, puis croît continuellement. La perméabilité commence donc par croître, passe par un maximum, puis décroît, comme le montre la courbe B de la figure 3, tracée pour $t_1 = 1$ ou la courbe C tracée pour $t_1 = 0,3$.

Cette allure assez remarquable de la variation de la perméabilité avec le temps, suivant les différentes conditions expérimentales, a été précisément observée par C. E. Webb et L. H. Ford [6]. Nous donnons ici (*fig.* 4) une reproduction de la figure 2

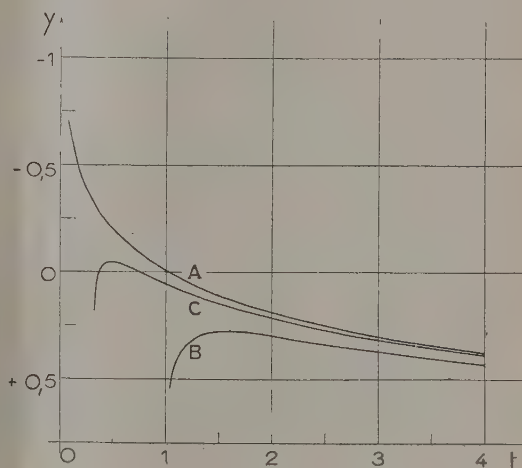


Fig. 3. — Variation de la perméabilité avec le temps courbes théoriques (échelles arbitraires).

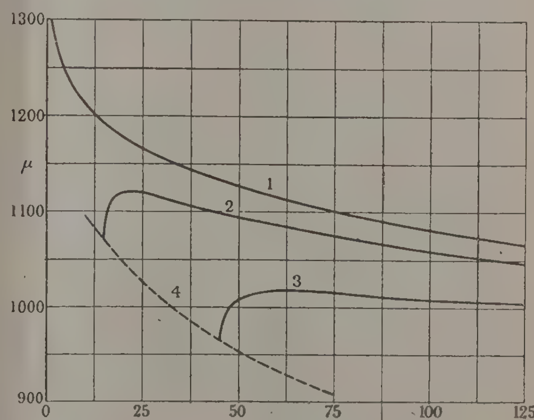


Fig. 4. — Variation de la perméabilité avec le temps : courbes expérimentales de Webb et Ford (le temps est exprimé en minutes).

du Mémoire de ces deux auteurs. La parenté des courbes 1, 2 et 3 avec nos courbes A, C et B est évidente : il semble donc bien que nous tenions la clé de ce curieux phénomène.

17. **Influence de la dispersion des forces de rappel.** — Parmi les phénomènes liés à la désaccommodation, il en est un qui est particulièrement intéressant et qui a été mis en évidence pour la première fois par Webb et Ford [6], puis confirmé

par G. Montalenti [16]. La perméabilité de la tôle de fer à 4 pour 100 de silicium diminue à mesure que le temps écoulé depuis la désaimantation augmente : c'est le phénomène dont nous venons de

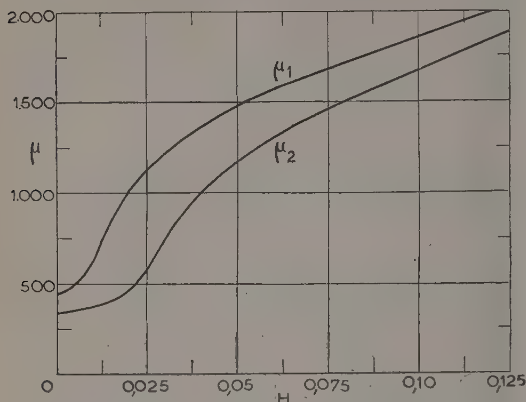


Fig. 5. — Courbes de perméabilité (Webb et Ford) : 2 mn après désaimantation (μ_1) et deux semaines après désaimantation (μ_2), en fonction du champ.

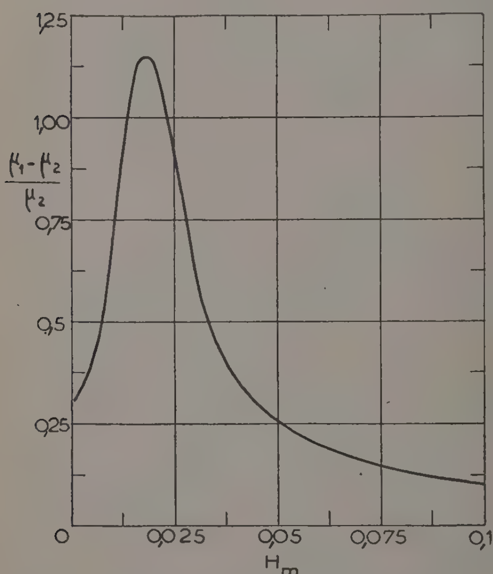


Fig. 6. — Valeur du rapport $\frac{\mu_1 - \mu_2}{\mu_2}$ en fonction du champ, d'après Webb et Ford.

faire la théorie. Soit, par exemple, μ_1 la perméabilité mesurée en courant alternatif 2 mn après la désaimantation et μ_2 la perméabilité mesurée deux semaines après. L'expérience montre que le rapport $\frac{\mu_1 - \mu_2}{\mu_2}$ croît d'abord avec l'amplitude H_m du champ de mesure, passe par un maximum aux environs de $H_m = 0{,}015$ Oe et décroît ensuite rapidement comme le montrent les figures 5 et 6 empruntées à Webb et Ford.

La théorie, sous la forme simplifiée qui a été développée plus haut, montre au contraire que le rapport $\frac{\mu_1 - \mu_2}{\mu_2}$ devrait décroître uniformément avec le champ. Il faut sans doute rechercher l'origine de ce désaccord dans les simplifications, sans doute excessives, que nous avons apportées au problème et, en particulier, dans le fait d'avoir attribué à toutes les parois la même force de rappel à la position d'équilibre. Nous allons montrer que l'on obtient des propriétés qui se rapprochent beaucoup des données de l'expérience quand on considère les parois à 180° pour lesquelles les *forces ordinaires de rappel* à la position d'équilibre, pour un déplacement de l'ordre de grandeur de d, *sont négligeables devant les forces associées à la stabilisation de diffusion*. Nous avions exclu implicitement de telles parois de notre étude précédente puisque nous nous étions volontairement limité à l'étude du traînage considéré comme une petite perturbation. L'existence même des lois de Rayleigh, relatives aux champs faibles, montre d'ailleurs [13] que de telles parois, à forces de rappel très faibles, existent nécessairement.

Des parois de cette nature ne subissent que de petits déplacements, inférieurs à $4d$, aussi longtemps que le champ magnétique appliqué reste inférieur à une certaine limite H_s correspondant à la position dans laquelle la pression magnétique appliquée $2H_sJ_s$ est égale au maximum de la pression de traînage, c'est-à-dire au maximum de la courbe représentée sur la figure 2. Ceci donne sensiblement

$$H_m = \frac{W_0\,G(t)}{J_s}. \tag{85}$$

Au delà de cette limite, la paroi « décroche » et subit un très grand déplacement : si les forces de rappel sont négligeables, elle balaye le domaine élémentaire tout entier. Le passage de H par la valeur H_m est donc marqué par une discontinuité de la perméabilité. L'abscisse de cette discontinuité dépend du temps : elle se produit dans un champ H', très petit, lorsqu'on opère immédiatement après désaimantation, mais si l'on attend un temps très long, il faut un champ H'' beaucoup plus grand. Schématiquement, on obtient des variations de la perméabilité telles que celles que représente la figure 7, avec un maximum du rapport $\frac{\mu_1 - \mu_2}{\mu_2}$ dans l'intervalle $H' < H < H''$.

Cette analyse schématique montre que ce maximum disparaîtrait si la mesure de μ_1 était effectuée un temps excessivement court après la désaimantation, inférieur à la plus petite des constantes de temps θ : on obtiendrait alors, même dans les champs les plus faibles, une valeur élevée de μ_1, représentée en AB sur la figure 7, de telle sorte que $\frac{\mu_1 - \mu_2}{\mu_2}$

ne présenterait plus de maximum. Dans la pratique, l'expérience a montré, dans les tôles de fer à 4 pour 100 de silicium, la présence de constantes de temps

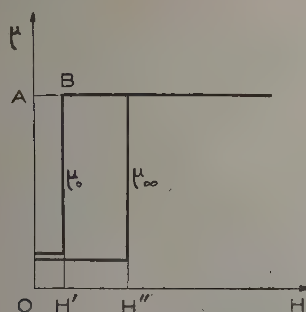


Fig. 7. — Courbe schématique théorique donnant la variation de la perméabilité avec le champ aussitôt après la désaimantation (μ_0) ou un temps notable après (μ_∞).

bien inférieures à la seconde : les conditions expérimentales correspondent donc bien à la présence du maximum.

Pour calculer d'une manière précise les phénomènes, il faudrait, en dehors de la répartition des constantes de temps, connaître aussi la répartition actuellement mal connue des forces de rappel entre les différentes parois. En l'absence de telles données et pour acquérir néanmoins une idée plus précise des phénomènes, nous avons calculé les variations avec le champ de la perméabilité d'une substance telle que la surface dS des parois à 90°, pour lesquelles la pression de rappel est comprise entre a^2u et $(a + \mathrm{d}a)^2u$, soit égale à $\frac{3\,S_0\,a^2\,\mathrm{d}a}{a_0^3}$, pour a compris entre 0 et a_0, et soit nulle en dehors de cet intervalle. Nous supposons que la substance contient également des parois à 180°, de même surface totale S_0, avec des forces de rappel deux fois plus grandes que les précédentes, mais réparties de la même façon. Pour faciliter les calculs, nous avons remplacé $f'(U)$ par les valeurs approchées suivantes : $-\frac{2U}{3d}$ dans l'intervalle $0 < U < \frac{3d}{2}$ et par -1 au delà et remplacé $f''(U)$ par $-\frac{4U}{3d}$ dans l'intervalle $0 < U < \frac{3d}{2}$; par -2 dans l'intervalle $\frac{3d}{2} < U < \frac{15d}{2}$ et par 0 au delà. Nous avons effectué les calculs pour les deux valeurs suivantes de $G(t)$:

$$G(t) = 0{,}15\frac{da_0^2}{W_0}, \qquad G(t) = 0{,}75\frac{da_0^2}{W_0}.$$

La figure 8, tracée en coordonnées arbitraires, montre les valeurs correspondantes μ_1 et μ_2 de la perméabilité ainsi que les valeurs de $\frac{\mu_1 - \mu_2}{\mu_2}$. Ces courbes présentent des analogies frappantes avec celles de Webb et Ford. Il paraît donc assez vraisemblable que l'on puisse interpréter sur ces bases les expériences de ces auteurs.

18. **Conclusions.** — Il paraît légitime de conclure de cet exposé que la théorie proposée explique qualitativement l'ensemble des propriétés connues relatives à la désaccommodation et au traînage de diffusion.

Il reste à comparer quantitativement la théorie à l'expérience : ce n'est pas facile, car, pour obtenir une précision expérimentale suffisante, il faut étudier des substances qui possèdent un gros traînage et auxquelles la méthode d'approximation exposée plus haut (§ 11) ne doit certainement plus s'appliquer, sauf cas exceptionnels. Il importerait aussi de tenir compte des proportions relatives des parois à 90° et à 180°, ainsi que de la dispersion des forces de rappel $R'(u')$ et $R''(u'')$.

Si la théorie s'avère définitivement correcte, on pourrait en utiliser les résultats pour déterminer la constante W_0 et la fonction $G(t)$ qui suffisent à caractériser le traînage. Il serait alors intéressant d'étudier les variations de W_0 en fonction de la température et de la concentration en carbone, azote ou hydrogène ainsi que les relations entre la fonction $G(t)$ et l'état physique de la substance.

On pourrait objecter à ce programme la difficulté

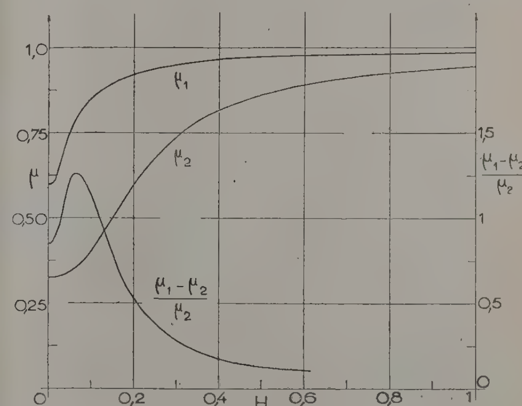


Fig. 8. — Courbes théoriques donnant pour un modèle simple les variations de μ_1, μ_2 et de $\frac{\mu_1 - \mu_2}{\mu_2}$ en fonction du champ; μ_1 et μ_2 représentent les perméabilités correspondant à deux intervalles de temps bien déterminés suivant la désaimantation.

de séparer le traînage de diffusion du traînage de fluctuations. On peut les distinguer en ce que le traînage de fluctuations n'affecte pas la perméabilité, à l'inverse du traînage de diffusion. D'une manière plus générale, lorsqu'on produit une variation importante d'aimantation, au moyen d'une variation discontinue du champ appliqué, la fraction de la

variation d'aimantation qui est fonction du temps est de la forme $\chi H_f(t)$, où $H_f(t)$ est un champ fictif dépendant du temps et indépendant de l'aimantation. Dans le cas du traînage de fluctuations, χ est la susceptibilité irréversible, correspondant aux conditions de l'expérience, tandis que, dans le cas du traînage de diffusion, χ est la susceptibilité réversible. Comme le rapport de ces deux susceptibilités varie beaucoup d'un point à l'autre du domaine d'hystérésis, il est possible de séparer ces deux espèces de traînage.

Je remercie M. Pauthenet dont l'aide m'a été précieuse dans l'exécution des figures.

Manuscrit reçu le 21 mars 1952.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] NÉEL L. — *J. Physique Rad.*, 1951, **12**, 339.
[2] NÉEL L. — *J. Physique Rad.*, 1950, **11**, 49.
[3] BARBIER J. C. — *C. R. Acad. Sc.*, 1950, **230**, 1040; 1952, **234**, 415.
[4] BARBIER J. C. — *J. Physique Rad.*, 1951, **12**, 352.
[5] SNOEK J. L. — *Physica*, 1938, **5**, 663; New developments in ferromagnetic materials, Elsevier, Amsterdam, 1947, § 16.
[6] WEBB C. E. et FORD L. H. — *J. Inst. Electr. Eng.*, 1934, **75**, 787.
[7] GUILLAUD C. — *Thèse*, Strasbourg, 1943.
[8] RICHTER G. — *Ann. Physik*, 1937, **29**, 605.
[9] BECKER R. et DÖRING W. — Ferromagnetismus, Springer Berlin, 1939.
[10] NÉEL L. — *Cahiers de Physique*, 1944, n° 25, p. 1.
[11] LIFSHITZ E. — *J. Phys. U. S. S. R.*, 1944, **8**, 337.
[12] KITTEL C. — *Rev. Mod. Physics.*, 1949, **21**, 541.
[13] NÉEL L. — *Cahiers de Physique*, 1942, n° 12, p. 1; 1943, n° 13, p. 18.
[14] MITKEWITCH A. — *J. Physique Rad.*, 1936, **7**, 133.
[15] JORDAN H. — *Elektr. Nachr. Techn.*, 1924, **1**, 7.
[16] MONTALENTI G. — *Ric. Scientifica e Ricostruz.*, 1947, **17**, n° 7-8, p. 3.

LE JOURNAL DE PHYSIQUE ET LE RADIUM. TOME 13, MAI 1952, PAGE 264.

INTERPRÉTATION DE QUELQUES MESURES DE SOLUBILITÉ DANS LES GAZ COMPRIMÉS

Par S. ROBIN et B. VODAR,

Laboratoire de Physique-Enseignement, Sorbonne
et Laboratoire des Hautes Pressions, Bellevue.

Sommaire. — Une théorie précédemment développée [1, 2] de la dissolution des solides ou des liquides dans les gaz comprimés est appliquée aux résultats expérimentaux obtenus par divers auteurs sur la composition de la phase gazeuse de quelques systèmes binaires. L'accord est satisfaisant en utilisant, pour les constantes de forces du potentiel de Lennard-Jones, des valeurs peu différentes de celles trouvées dans la littérature.

Nous avons montré [2] que, à température constante, la relation simple

$$\log m = A + B\rho \qquad (1)$$

(m, masse de solide par centimètre cube de gaz comprimé de densité relative ρ; A et B = const. permet de représenter, avec une assez bonne approximation, les résultats expérimentaux obtenus sur la composition de la phase gazeuse de divers systèmes binaires). Nous avons proposé pour cette relation une interprétation [1, 2] qui permet de déduire des résultats expérimentaux les constantes de forces entre molécules de solide (ou de liquide) et de gaz comprimé; des ordres de grandeurs raisonnables ont déjà été obtenus dans le cas du système phénanthrène-azote [2], mais il nous a semblé utile, pour mieux vérifier la validité de cette théorie, de l'appliquer à quelques systèmes binaires pour lesquels on connaît les constantes de forces des composants et pour lesquels des mesures ont été faites sur la composition de la phase gazeuse.

1. Rappel de l'interprétation [1, 2]. — Nous avons supposé que la dissolution des solides (ou des liquides) dans les gaz comprimés résultait d'une additivité de deux phénomènes : 1° une augmentation de la tension de vapeur du solide sous l'influence de la pression et 2° une interaction entre les molécules de solide et de gaz comprimé tendant généralement à augmenter la quantité de solide contenue dans la phase gazeuse. Le premier de ces phénomènes, indépendant de la nature du gaz

comprimé a été calculé en reprenant la démonstration de Poynting; mais, tandis que Poynting supposait le solide comprimé par un piston, nous avons admis que la compression était due à un gaz non parfait; moyennant quelques hypothèses, nous sommes arrivés à la relation

$$\mathrm{Log}_e \frac{m}{m_0} = \frac{\rho v_s}{22\,400} \tag{2}$$

(v_s, volume molaire du solide en centimètres cubes; ρ, densité en amagats du gaz comprimé; m et m_0, masses de solide par centimètre cube de la phase gazeuse dans le gaz de densité ρ et en l'absence du gaz compresseur).

L'effet Poynting sous la forme de la relation (2) se retrouve aisément par la thermodynamique statistique en supposant le solide surmonté d'un gaz de molécules sans interactions, mais, en plus, la thermodynamique statistique permet de prévoir un effet spécifique du gaz solvant, si l'on admet des interactions solvant-soluté. C'est ce deuxième phénomène qui est responsable des différences de solubilités observées avec divers gaz solvants pour un même corps dissous. En supposant en première approximation que les deux composants de la phase gazeuse obéissent à une équation d'état limitée au second coefficient du viriel, l'ensemble des deux phénomènes peut être représenté par la relation

$$\mathrm{Log}_e \frac{m}{m_0} = \rho\left(\frac{v_s}{22\,400} - 2B_{AB}\frac{\mathcal{N}}{22\,400}\right), \tag{3}$$

avec

$$B_{AB} = \int_0^\infty \left(1 - e^{-\frac{\varepsilon_{AB}}{kT}}\right) 4\pi r^2\,dr$$

($\mathcal{N}$, nombre d'Avogadro; k, constante de Boltzmann; ε_{AB}, potentiel d'interaction entre les molécules de solide A et de gaz compresseur B). La relation (3) est bien de la forme de (1) à température constante, le premier terme représentant l'effet Poynting (2), le second, les interactions. Calculé en utilisant le potentiel de Lennard-Jones :

$$\varepsilon_{AB}(r) = 4\varepsilon^\star\left[\left(\frac{\sigma_{AB}}{r}\right)^{12} - \left(\frac{\sigma_{AB}}{r}\right)^{6}\right], \tag{4}$$

B_{AB} peut s'écrire sous la forme réduite

$$\left.\begin{aligned} B_{AB} &= \frac{\pi}{6}\sigma_{AB}^3 B_r(T_r),\\ \frac{1}{T_r} &= \frac{\varepsilon_{AB}^\star}{k}\,\frac{1}{T}, \end{aligned}\right\} \tag{5}$$

$B_r(T_r)$ étant une fonction universelle représentée sur la figure 1. (Cette figure a été déduite de celle donnée par Hirschfelder et Roseveare [3] par modification des ordonnées). Pour $B_r < 0$ et un intervalle $\Delta\left(\frac{1}{T_r}\right)$ suffisamment petit, on peut écrire

$$B_r = a - \frac{b}{T_r} \qquad (a \text{ et } b = \text{const.}),$$

dans ces conditions, la relation (3) s'écrit

$$\log_{10}\frac{m}{m_0} = 0{,}43\frac{v_s}{22\,400}\rho - 0{,}86\,\frac{\pi}{6}\sigma_{AB}^3\frac{\mathcal{N}}{22\,400}\left(a - \frac{b\,\varepsilon^\star}{kT}\right)\rho$$

ou en introduisant la valeur $b_0 = \frac{2}{3}\pi\mathcal{N}\sigma_{AB}^3$:

$$\log_{10}\frac{m}{m_0} = 0{,}43\frac{v_s}{22\,400}\rho - 9{,}60.10^{-6}\,b_0\left(a - b\,\frac{\varepsilon^\star}{k}\,\frac{1}{T}\right)\rho. \tag{6}$$

Dans les tableaux II et IV, nous posons

$$P = \frac{0{,}43\,v_s}{22\,400} \quad \text{et} \quad I = 9{,}60.10^{-8}\,b_0\left(a - b\,\frac{\varepsilon^\star}{k}\,\frac{1}{T}\right),$$

donc

$$\log_{10}\frac{m}{m_0} = (P + I)\rho.$$

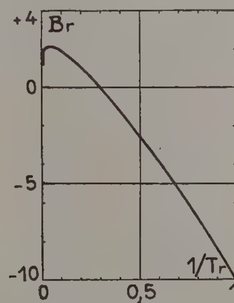


Fig. 1.

2. **Courbes expérimentales de solubilité et constantes de forces.** — Les courbes expérimentales de solubilité ont été recalculées par nous [2] d'après les données numériques des auteurs indiqués pour être présentées sous la forme de la relation (1), en faisant appel à des données complémentaires sur les densités relatives des gaz solvants : H_2 [4], N_2 [5], CO_2 [6], CH_4 [7]. Les constantes de forces utilisées (sauf pour I_2, CS_2 et C_6H_6) sont celles du tableau I, ces constantes ne sont pas connues avec une très bonne précision et elles varient quelquefois suivant les auteurs et les méthodes de mesures (deuxième coefficient du viriel, viscosité, etc.) dans d'assez larges limites [10]. D'autre part, ces constantes ne sont généralement connues que pour les corps purs; nous avons supposé que les constantes mixtes $\varepsilon_{AB}^\star$ et σ_{AB} pour les interactions entre deux molécules d'espèces différentes A et B étaient données par les relations

$$\sigma_{AB} = \frac{1}{2}(\sigma_{AA} + \sigma_{BB}), \tag{7}$$

$$\varepsilon_{AB}^\star = \sqrt{\varepsilon_{AA}^\star\,\varepsilon_{BB}^\star}, \tag{8}$$

relations seulement approximatives. Nous ne pouvons

donc pas espérer une comparaison précise entre la formule (6) et les résultats expérimentaux, eux-mêmes quelquefois variables suivant les auteurs (*voir* par exemple ci-dessous pour le système H_2O—N_2). C'est pourquoi nous n'avons pas cherché à obtenir les valeurs de a et b de l'égalité (6) avec une grande précision; nous les avons déduites graphiquement de la courbe de la figure 1 pour des intervalles de températures Δt correspondant à toute une série de mesures. Dans le cas des molécules polaires (H_2O, CH_3OH), pour tenir compte de l'action du moment dipolaire permanent μ sur les molécules non polaires du gaz compresseur, il faut utiliser un potentiel d'interaction de la forme

$$\varepsilon_{AB} = 4\varepsilon^*_{AB}\left[\left(\frac{\sigma_{AB}}{r}\right)^{12} - \left(\frac{\sigma_{AB}}{r}\right)^{6}\right] - \frac{\mu^2\alpha}{r^6} \qquad (9)$$

(α, polarisabilité des molécules non polaires) [11]. Cela revient à ajouter aux formules (7) et (8) un terme correctif [1] obtenu par identification des relations (4) et (9). Une correction un peu différente a été utilisée récemment par Lunbeck et Boerboom [12]. Néanmoins, étant donné l'imprécision des valeurs de ε^* et des résultats expérimentaux, nous avons jugé inutile d'utiliser des relations compliquées et nous avons effectué les calculs du tableau II avec les relations (7) et (8) comme pour les moléculaires non polaires.

La comparaison de la relation (6) avec l'expérience peut être effectuée de deux manières : si les mesures sur la composition de la phase gazeuse du système binaire ont été effectuées sur des intervalles de températures et de densités suffisants et si elles peuvent être bien représentées par une équation de la forme

$$\log \frac{m}{m_0} = \left(A + \frac{B}{T}\right)\rho \qquad (A \text{ et } B = \text{const.}),$$

on peut en déduire σ_{AB} et ε^*_{AB}, les valeurs de a et b étant ajustées par approximations successives sur la courbe de la figure 1 [2]. Inversement, connaissant ε^*_{AB} et σ_{AB}, on peut calculer $\log_{10}\frac{m}{m_0}$; c'est cette méthode que nous avons d'abord cherché à utiliser avec les valeurs du tableau I.

TABLEAU I.

	H_2.	He.	N_2.	CO_2.	CH_4.	CH_3OH.	H_2O.	I_2.	CS_2.	C_6H_6.	Xe.	He.
σ(Å).........	2,92	2,56	3,698	4,48	3,817	2,40	2,64	4,98	4,438	5,27	4,064	2,63
$\frac{\varepsilon^*}{k}$ (°K).........	36,77	10,16	95,05	189	148,2	630	380	550	488	440	224,5	6,03
Référence.....	*a*					*b*		*c*			*d*	*e*

a. Valeurs admises [8] (deuxième coefficient du viriel).
b. Valeurs déduites de Rowlinson [9] (deuxième coefficient du viriel).
c. [10] (viscosité).
d. [13] (deuxième coefficient du viriel).
e. Valeurs déduites du deuxième coefficient du viriel antérieurement aux valeurs (*a*) et en bon accord avec les valeurs déduites des mesures de viscosité (*voir* [10]).

3. **Quelques exemples de comparaison.** — Ces exemples sont forcément limités étant donné le nombre restreint de mesures faites sur la dissolution des solides (ou des liquides) dans les gaz comprimés purs. D'ailleurs, parmi ces mesures, on ne peut utiliser que celles pour lesquelles la tension de vapeur du solide ou du liquide est suffisamment faible pour que $\bar{m}$ soit très petit par rapport à ρ [3]; les mesures faites au voisinage du point critique du solvant sont également difficilement utilisables car, par suite de la grande compressibilité du gaz, à de faibles erreurs sur les pressions correspondent d'énormes erreurs sur les densités relatives.

1° *Système méthanol-gaz comprimés.* — Les calculs sont résumés dans le tableau II; sur la figure 2, les droites sont déduites de l'équation (6) et les points sont les points expérimentaux [14] pour diverses températures; les valeurs de m_0 ont été déduites des tensions de vapeur de CH_3OH (*voir*, par exemple [15]). On voit que l'accord est très bon avec CH_4 mais moins satisfaisant avec N_2. Sur la figure 3, nous avons comparé les valeurs expérimentales et théoriques de $\log_{10}\frac{m}{m_0}$ pour différents gaz solvants à 50 et 75° C; l'accord est satisfaisant pour CO_2 et CH_4, moins bon pour H_2.

2° *Systèmes* H_2O-*gaz comprimés.* — Avec CH_4, les mesures utilisées [16] étant faites en utilisant les unités anglaises de température et de pression, alors que les densités relatives de CH_4 [7] sont données en unités ordinaires (degré C, atmosphère), nous avons procédé par des interpolations graphiques en utilisant les points expérimentaux des auteurs; nous n'avons pas utilisé les mesures à 100° F qui

(1) Ce terme correctif est négligeable pour σ_{AB} mais atteint 20 pour 100 pour ε^*_{AB} dans le cas le plus défavorable de H_2O—H_2 [avec la relation (9)].

(2) Nous avons déjà utilisé cette méthode dans le cas du système phénanthrène-azote [2].

(3) Hypothèse faite dans l'établissement de la relation (5).

TABLEAU II.

	σ. (Å).	$\frac{\varepsilon^*}{k}$, (°K).	b_0 (cm³:mole).	Δt (°C).	a.	$-b$.	P.	I.	$\frac{1}{\rho}\log_{10}\frac{m}{m_0}$.
$CH_3OH—H_2$...	2,66	152	23,89	50 à 75	4	13	0,00077	$-0{,}00092+\frac{0{,}453}{T}$	$-0{,}00015+\frac{0{,}453}{T}$
$CH_3OH—N_2$...	3,05	244	36,01	0 à 75	5,5	15,5	0,00077	$-0{,}00190+\frac{1{,}31}{T}$	$-0{,}00113+\frac{1{,}31}{T}$
$CH_3OH—CO_2$.	3,44	345	51,67	50 à 75	6	16	0,00077	$-0{,}00297+\frac{2{,}74}{T}$	$-0{,}00220+\frac{2{,}74}{T}$
$CH_3OH—CH_4$.	3,11	306	38,18	0 à 75	6	16	0,00077	$-0{,}00220+\frac{1{,}79}{T}$	$-0{,}00143+\frac{1{,}79}{T}$
$H_2O—H_2$.....	2,78	118	27,27	# 50	3,3	11,3	0,00034	$-0{,}00086+\frac{0{,}349}{T}$	$-0{,}00052+\frac{0{,}349}{T}$
$H_2O—N_2$.....	3,17	190	40,43	# 50	4,6	14,1	0,00034	$-0{,}00178+\frac{1{,}04}{T}$	$-0{,}00144+\frac{1{,}04}{T}$
$H_2O—CO_2$...	3,56	262	57,26	# 50	5,5	15,5	0,00034	$-0{,}00302+\frac{2{,}23}{T}$	$-0{,}00268+\frac{2{,}23}{T}$
$H_2O—CH_4$....	3,23	237	42,77	37 à 205	4,8	14,6	0,00034	$-0{,}00197+\frac{1{,}42}{T}$	$-0{,}00163+\frac{1{,}42}{T}$
Xe—He (*)....	3,31	47,7	46,03	# − 183	4,3	13,7	0,00069	$-0{,}00190+\frac{0{,}289}{T}$	$-0{,}00121+\frac{0{,}289}{T}$
Xe—He (**)...	3,35	36,8	47,71	# − 183	3,6	12,1	0,00069	$-0{,}00165+\frac{0{,}198}{T}$	$-0{,}00096+\frac{0{,}198}{T}$

(*) Calcul fait avec la valeur a du tableau I.
(**) Calcul fait avec la valeur e du tableau I.

conduisent à des points trop dispersés, ni à 460°F pour lesquels nous n'avions pas les densités relatives de CH_4. Les courbes expérimentales en pointillé

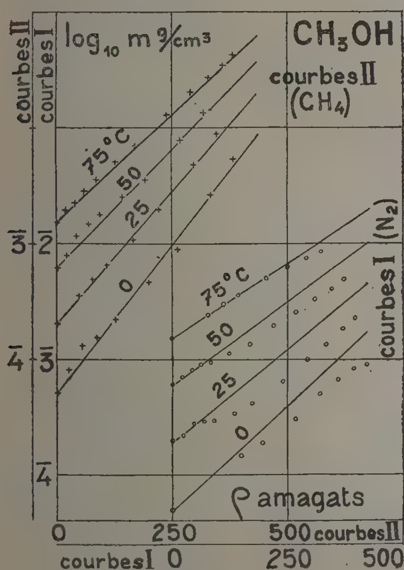


Fig. 2.

ne concordent pas très bien avec la relation (1) (*fig.* 4), mais les droites théoriques en traits pleins s'éloignent peu des points expérimentaux à basse pression.

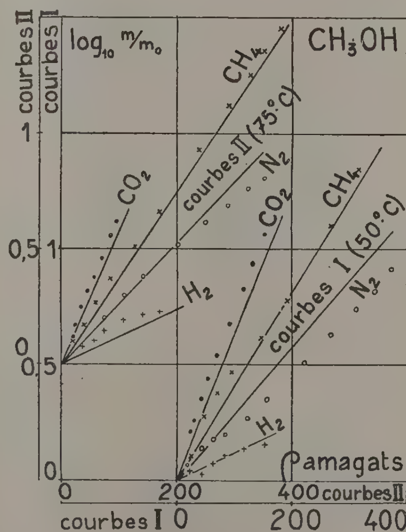


Fig. 3.

Sur la figure 5, nous avons comparé les dissolutions à 50° C dans H_2, N_2 et CO_2. La concordance est bonne pour CO_2 [17], plus mauvaise pour H_2 et N_2, si l'on utilise les résultats expérimentaux de Bartlett [18], mais elle est très bonne pour N_2 si

l'on utilise les résultats expérimentaux de Saddington et Krase [19] qui se limitent à trois points à 50° C.

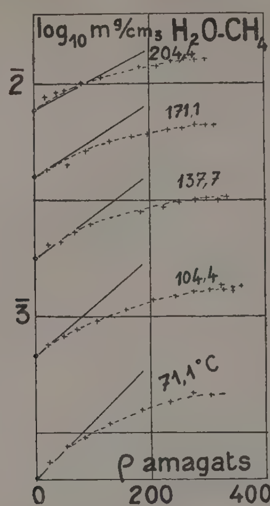


Fig. 4.

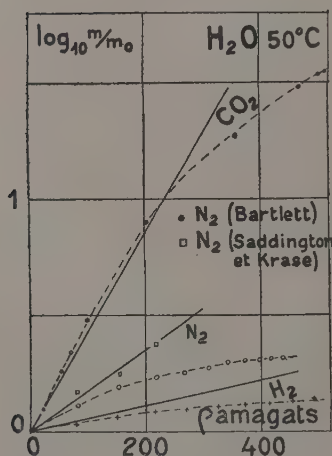


Fig. 5.

(D'après Saddington et Krase, l'écart important entre les résultats expérimentaux [18] et [19] serait imputable à la condensation d'une partie de l'eau dissoute dans le robinet de détente de Bartlett maintenu à une trop basse température; il serait donc possible qu'une erreur analogue existe pour les mesures faites avec H_2 par le même auteur.)

3° *Système iode*-CO_2. — Les points expérimentaux

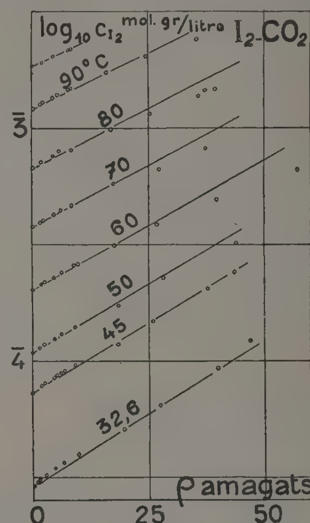


Fig. 6.

Tableau III (*).

	C_6H_6.	I_2.	CS_2.
σ(Å)	4,16	4,98	4
$\frac{\varepsilon^*}{k}$	425	442	400

(*) Ces valeurs qui pourraient être considérées comme déduites des résultats expérimentaux en utilisant les relations (7) et (8) ne jouent ici qu'un rôle secondaire. On doit remarquer que l'écart entre les constantes mixtes utilisées dans le tableau IV et les constantes mixtes déduites du tableau I est inférieur à l'écart entre les constantes des corps purs des tableaux I et III : l'écart absolu pour σ_{AB} et l'écart relatif pour ε^*_{AB} sont divisés par 2.

Tableau IV.

	σ. (Å).	$\frac{\varepsilon^*}{k}$ (°K).	b_0 (cm³:mole).	Δt (°C).	a.	— b.	P.	I.	$\frac{1}{\rho}\log_{10}\frac{m}{m_0}$.
I_2—CO_2........	4,73	289	134,3	32 à 98	6	16	0,00104	$-0,00773+\frac{5,96}{T}$	$-0,0067+\frac{5,96}{T}$
CS_2—H_2.......	3,46	121	52,57	≠ 0	4	13	0,00113	$-0,00202+\frac{0,793}{T}$	$-0,00089+\frac{0,793}{T}$
CS_2—N_2.......	3,85	195	72,43	≠ 0	4,8	14,6	0,00113	$-0,00334+\frac{1,98}{T}$	$-0,00221+\frac{1,98}{T}$
CS_2—CO_2......	4,24	275	96,75	≠ 0	6	16	0,00113	$-0,00557+\frac{4,086}{T}$	$-0,00444+\frac{4,086}{T}$
C_6H_6—H_2......	3,54	125	56,30	25 à 150	3,5	11,8	0,00170	$-0,00189+\frac{0,797}{T}$	$-0,00019+\frac{0,797}{T}$
C_6H_6—N_2......	3,93	201	77,03	16 à 125	4,7	14,1	0,00170	$-0,00347+\frac{2,096}{T}$	$-0,00177+\frac{2,096}{T}$

sont déduits de [20] ainsi d'ailleurs que les densités relatives de CO_2. Nous avons conservé les notations des auteurs donnant les concentrations en molécules-grammes par litre, ce qui ne change pas les pentes des droites obtenues. Les données du tableau I conduisent à des pentes légèrement trop fortes; nous avons adopté pour I_2 les valeurs peu différentes du tableau III qui donnent des résultats satisfaisants (*fig.* 6); les calculs sont résumés dans le tableau IV.

4° *Systèmes* CS_2-*gaz comprimés.* — Des mesures ont été faites à 0° C avec H_2, N_2 et CO_2 [21]; là encore les valeurs du tableau I conduisent à des pentes trop fortes; par contre, les valeurs du tableau III obtenues après quelques tâtonnements représentent assez bien les résultats expérimentaux (*fig.* 7). [La valeur adoptée pour $\frac{\varepsilon^*}{k}$ (tableau III est voisine de la valeur 410° K obtenue à partir de la température critique [10].]

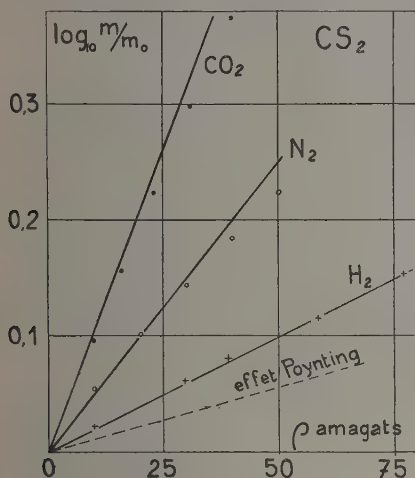


Fig. 7.

5° *Systèmes* C_6H_6—N_2 *et* H_2. — Pour C_6H_6—N_2, les résultats expérimentaux [22] ne sont pas parfaitement représentés par la relation (1) pour les températures comprises entre 0 et 75° C; avec C_6H_6—H_2 [23], la représentation est meilleure, même pour des pressions atteignant 3 000 atm. Les constantes du tableau I conduisent à des droites à peu près tangentes à l'origine des courbes expérimentales pour C_6H_6—N_2, mais à des pentes trop fortes pour C_6H_6—H_2 (*fig.* 8). Il est possible que les relations (7) et (8) ne soient pas utilisables avec la molécule plane du benzène. Néanmoins, les pentes de ces courbes correspondent à des ordres de grandeurs raisonnables pour ε^*_{AB} et σ_{AB}. Les droites représentées sur la figure 8 correspondent aux constantes du tableau III pour C_6H_6 qui donnent une assez bonne coïncidence pour C_6H_6—N_2 à 150° C et C_6H_6—H_2 à 125° C.

A propos des dissolutions dans H_2, nous avons fait remarquer [2] que les interactions sont faibles et que, dans certains cas, le terme de Poynting représente assez bien à lui seul les résultats expérimentaux;

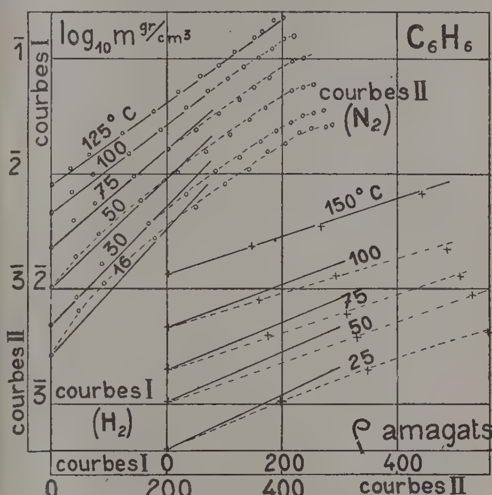


Fig. 8.

cela est vrai pour C_6H_6 vers 100° C car on a alors $\frac{\varepsilon^*_{AB}}{kT} \# 0{,}3$, ce qui correspond au changement de signe de $B_r(T_r)$ (*fig.* 1). A des températures plus basses, le terme d'interaction devient plus important; à des températures plus élevées [d'après la formule (5)], la courbe expérimentale doit se placer sous la droite de Poynting à condition que la tension de vapeur de C_6H_6 reste suffisamment faible pour que la formule (5) soit valable. Par contre, dans le cas de CS_2—H_2, le terme de Poynting ne suffit pas à représenter les résultats expérimentaux comme le montre la figure 7, sur laquelle nous avons porté, en pointillé, la droite de Poynting [égalité (2)].

6° *Système xénon-hélium.* — Il nous semble que la relation (6) devrait s'appliquer particulièrement bien à la dissolution du xénon solide dans l'hélium; à notre connaissance, les mesures n'ont pas été faites, mais elles seraient possibles par la méthode dynamique classique ou par la méthode spectrographique que nous avons utilisée pour le système phénanthrène-azote [2], la raie de résonance 1469 Å du xénon étant dans une région spectrale permettant ces mesures avec une bombe munie de fenêtres de fluorine. On pourrait utiliser comme température fixe, par exemple, le point d'ébullition de O_2; dans ces conditions, la tension de vapeur du xénon solide serait de 0,15 mm environ [24]. On devrait donc utiliser, comme dans nos expériences sur la pertur-

bation de la raie 1469 Å de Xe par A [2], des épaisseurs de gaz comprimé de l'ordre du millimètre, pour avoir une raie nette sans que son maximum soit totalement absorbé ([4]).

Nous avons fait les calculs dans le tableau II en admettant comme densité du Xe solide la valeur approximative 3,64 g : cm³ [25] et comme constantes de forces pour He les valeurs récentes (*a*, tableau I) déduites du second coefficient du viriel et les valeurs plus anciennes (*e*, tableau I) qui semblent mieux en accord avec les mesures de viscosité [10]. Comme les valeurs de $\log \frac{m}{m_0}$ obtenues avec ces deux séries de constantes diffèrent assez notablement, la mesure que nous proposons pourrait peut-être fournir un argument en faveur de l'un ou l'autre de ces groupes de valeurs.

Conclusion. — Ces calculs, bien que peu précis, montrent que l'essai d'interprétation [1] de la dissolution des solides ou des liquides dans les gaz comprimés est en assez bon accord avec les résultats expérimentaux; une meilleure approximation à des pressions plus élevées pourrait probablement être obtenue en utilisant des calculs analogues avec une meilleure équation d'état pour les composants de la phase gazeuse (s'étendant au troisième coefficient du viriel par exemple). Envisagée sous cet angle, l'étude de la dissolution dans les gaz comprimés peut être une méthode de mesure directe des constantes mixtes ε^*_{AB} et σ_{AB}; si les constantes ε^* et σ sont connues pour les deux composants purs, elle peut servir à contrôler les relations (7) et (8). Il serait donc très utile que des résultats expérimentaux précis plus nombreux soient recherchés dans ce domaine encore peu étudié de la dissolution dans les gaz comprimés.

Ce travail a été rendu possible grâce à l'aide du Centre national de la Recherche scientifique.

([4]) Ce raisonnement suppose que l'influence de la température sur l'intensité de la raie est faible.

Manuscrit reçu le 20 février 1952.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Robin S., Vodar B. et Bergeon R. — *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **232**, 2189.
[2] Robin S. — *Thèse*, Paris, 1951 (parue en trois articles dans le *J. Chim. Phys.*, 1951, **48**, 415 et 501; 1952, **49**, 1).
[3] Hirschfelder J. O. et Roseveare W. E. — *J. Phys. Chem.*, 1939, **43**, 15.
[4] Michels A. et Goudeket M. — *Physica*, 1941, **8**, 347.
[5] Wouters H. M. — *Thèse*, Amsterdam, 1941.
[6] Michels-Veraart C. A. M. — *Thèse*, Amsterdam, 1937.
[7] Levtchenko G. T. — *J. fiz. khimii*, 1944, **18**, 453.
[8] Bird R. B., Spotz E. L. et Hirschfelder J. O. — *J. Chem. Phys.*, 1950, **18**, 1395.
[9] Rowlinson J. S. — *Trans. Faraday Soc.*, 1949, **45**, 974.
[10] Hirschfelder J. O., Bird R. B. et Spotz E. L. — *Chem. Rev.*, 1949, **44**, 205.
[11] London F. — *Trans. Faraday Soc.*, 1937, **33**, 8.
[12] Lunbeck R. J. et Boerboom A. J. H. — *Physica*, 1951, **17**, 76.
[13] Beattie J. A., Barriault R. J. et Brierley J. S. — *J. Chem. Phys.*, 1951, **19**, 1219.
[14] Krichevsy I. et Korolewa M. — *Acta physicochim. U. R. S. S.*, 1941, **15**, 327.
[15] Partington J. R. — An advanced treatise on physical chemistry, vol. 2. The properties of liquids, London, 1951, p. 251.
[16] Olds R. H., Sage B. H. et Lacey W. N. — *Ind. Eng. Chem.*, 1942, **34**, 1223.
[17] Wiebe R. et Gaddy V. L. — *J. Amer. Chem. Soc.*, 1941, **63**, 475.
[18] Bartlett E. P. — *J. Amer. Chem. Soc.*, 1927, **49**, 65.
[19] Saddington A. et Krase N. — *J. Amer. Chem. Soc.*, 1934, **56**, 353.
[20] Braune H. et Strassmann F. — *Z. physik. Chem.*, 1929, A **143**, 225.
[21] Euken A. et Bressler F. — *Z. physik. Chem.*, 1928, **134**, 230.
[22] Krichevsky I. et Gamburg D. — *Acta physicochim. U. R. S. S.*, 1942, **16**, 362.
[23] Ipatev V. V., Teodorovitch V. P., Brestkine A. P. et Artemovitch V. S. — *J. fiz. khimii*, 1948, **22**, 833.
[24] Peters K. et Weil K. — *Z. physik. Chem.*, 1930, A **148**, 27.
[25] Natta G. et Nasini A. — *Atti Accad. Linc. Rend.*, (6), 1930, **11**, 1009.

ANOMALIES DANS LE SPECTRE DE DIFFUSION DES CRISTAUX PIÉZOÉLECTRIQUES.
III. — PERCHLORATE DE LITHIUM HYDRATÉ.

Par Jean-Paul MATHIEU et Lucienne COUTURE-MATHIEU.
Laboratoire des Recherches physiques, Sorbonne.

Sommaire. — Étude du spectre de Raman d'un monocristal dans diverses orientations. La plupart des raies s'interprètent par la théorie de Placzek en tenant compte de la structure du cristal. Cependant, certains faits échappent à la théorie : variations du tenseur de polarisabilité dérivé et de la fréquence de certaines raies avec l'orientation.

1. Données expérimentales. — Les cristaux de formule ClO_4Li, $3H_2O$ ont été obtenus par évaporation lente à 18° C de solutions aqueuses. Ils appartiennent au groupe $C_{6v}^4 — C.6mc$ [7]. Il y a deux molécules dans la maille; on distingue des ions ClO_4 de symétrie propre C_{3v}; chaque atome Li, de symétrie propre C_{3v}, est entouré par six molécules d'eau de symétrie propre C_s [3].

Le monocristal était taillé en forme de parallélépipède dont une arête était parallèle à l'axe sénaire OZ. En l'éclairant en lumière naturelle ou polarisée et en analysant la lumière diffusée dans une direction Oy à angle droit de la direction d'éclairement Ox, pour plusieurs orientations du cristal, on peut déterminer le type de symétrie des vibrations correspondant aux raies observées et les intensités relatives des coefficients du tenseur de polarisabilité dérivé qui caractérise chacun de ces types.

Rappelons que les carrés des coefficients qui déterminent l'intensité des raies constituent des tableaux de la forme suivante pour les trois types de vibrations actifs :

$$\begin{vmatrix} \varepsilon_{XX}^2 & & \\ & \varepsilon_{XX}^2 & \\ & & \varepsilon_{ZZ}^2 \end{vmatrix}, \quad \begin{vmatrix} & & \varepsilon_{ZX}^2 \\ & & \varepsilon_{ZX}^2 \\ \varepsilon_{ZX}^2 & \varepsilon_{ZX}^2 & \end{vmatrix}, \quad \begin{vmatrix} \varepsilon_{XX}^2 & \varepsilon_{XX}^2 & \\ \varepsilon_{XX}^2 & \varepsilon_{XX}^2 & \\ & & \end{vmatrix}$$

(A_1) (E^-) (E^+)

Les résultats des mesures sont donnés dans le tableau I :

Tableau I.

Fréquence ν (cm⁻¹)...	60-71	89	~125	432	464	619-623
Intensité ...	$\varepsilon_{ZZ}^2 = 6,5$; $\varepsilon_{XX}^2 = 0$	$\varepsilon_{XX}^2 = 1,1$	f	f	$\varepsilon_{XX}^2 = 3,3$; $\varepsilon_{ZX}^2 = 7,1$	$\varepsilon_{ZZ}^2 = 3$ à $9,5$
Type ...	A_1	E^+	E^-	E^-	$E^+ + E^-$	A_1

Fréquence ν (cm⁻¹)...	635	639	~900	936	1 075	1 101	1 105
Intensité ...	$\varepsilon_{XX}^2 = 5,4$	$\varepsilon_{ZX}^2 = 2,6$	f	$\varepsilon_{ZZ}^2 = 28$; $\varepsilon_{XX}^2 = 47$	$\varepsilon_{ZX}^2 = 1$	$\varepsilon_{ZZ}^2 = 8,3$; $\varepsilon_{XX}^2 = f$ ou 0	$\varepsilon_{XX}^2 = 4,3$
Type ...	E^+	E^-		A_1	E^-	A_1	E^+

Fréquence ν (cm⁻¹)...	1 122-1 150	1632	3 522	3 547	3 574
Intensité ...	variable	$\varepsilon_{XX}^2 = 2$	$\varepsilon_{XX}^2 = 1,2$	$\varepsilon_{ZZ}^2 = 1,3$; $\varepsilon_{XX}^2 = 10$	$\varepsilon_{XX}^2 = 0,7$
Type ...	?	E^+	E^+	A_1	E^+

Les intensités des raies de fréquence inférieure à celle de la raie 1632 cm⁻¹ (excitées par la radiation 4 358 Å du mercure), ont été mesurées relativement à la composante ε_{XX}^2 de cette raie. Celles des

raies de fréquence supérieure à 3 500 cm^{-1} (excitées par la radiation 4 047 Å) ont été rapportées à la composante ε_{XX}^2 de la raie 3 547 cm^{-1}.

2. **Discussion des résultats.** — *Vibrations externes.* — Entre 60 et 125 cm^{-1}, les raies observées sont dues aux oscillations des ions Li, des ions ClO_4 et des molécules OH_2 considérées comme rigides.

La théorie prévoit un grand nombre de ces vibrations externes : 4 de type A_1, 7 de type E^-, 8 de type E^+. On en observe seulement 3; il est vrai que les librations des ions ClO_4 autour d'axes perpendiculaires à OZ, par exemple, bien qu'actives, doivent être peu intenses.

Vibrations de l'ion ClO_4. — L'ion libre en forme de tétraèdre régulier centré possède quatre fréquences fondamentales : ν_1 simple, ν_2 double, ν_3 et ν_4 triplement dégénérées. Dans le cristal considéré, l'ion n'a plus que la symétrie C_{3v} et il y a deux ions par maille. Par cessation de dégénérescence et couplage, on doit obtenir théoriquement les oscillations suivantes, avec leur type suivant la notation de Placzek et les valeurs relatives de leurs intensités, représentées par les carrés des coefficients du tenseur de polarisabilité dérivé; ces intensités ont été calculées dans l'hypothèse où le tétraèdre est infiniment peu déformé par abaissement de symétrie.

$$\nu_1 \to 1\,A_1 \quad (\varepsilon_{XX}^2 = \varepsilon_{ZZ}^2) \quad \text{et} \quad 1\,B_1 \quad (\text{inactive}),$$

$$\nu_2 \to 1\,E^+ \quad (\varepsilon_{XX}^2 = \lambda) \quad \text{et} \quad 1\,E^- \quad (\varepsilon_{ZX}^2 = 2\lambda),$$

$$\nu_3 \text{ ou } \nu_4 \to 1\,A_1 \quad (\varepsilon_{XX}^2 = \mu;\ \varepsilon_{ZZ}^2 = 4\mu),$$

$$1\,B_1 \quad (\text{inactive}), \quad 1\,E^+ \quad (\varepsilon_{XX}^2 = 2\mu), \quad 1\,E^- \quad (\varepsilon_{ZX}^2 = \mu)$$

La raie 936 cm^{-1}, due à la vibration totalement symétrique ν_1 du tétraèdre, n'a pas ses coefficients ε_{XX} et ε_{ZZ} égaux, mais le premier est plus grand. L'augmentation des variations de polarisabilité dans le plan XOY est due à l'action des molécules d'eau rattachées aux ions ClO_4 par des liaisons dirigées dans ce plan [3].

Comme le prévoit la théorie, la vibration ν_2 donne bien naissance à une raie de type E^+ et une de type E^- confondues en 464 cm^{-1}, mais décelées par les mesures de polarisation. De plus, on observe une raie très faible de type E^- à 432 cm^{-1}.

Parmi les trois raies que la théorie fait dériver de la vibration ν_4, deux se trouvent à 639 cm^{-1} (E^-) et 635 cm^{-1} (E^+); le rapport de leurs intensités est normal. La troisième raie, de type A_1, a une fréquence qui varie entre 619 et 623 cm^{-1} avec l'orientation du cristal; en même temps, les valeurs des coefficients du tenseur qui lui correspond varient (*cf.* § 3).

Les trois raies provenant de la vibration ν_3 sont situées à 1105 cm^{-1} (E^+), 1075 cm^{-1} (E^-), 1101 cm^{-1} (A_1). Le rapport d'intensité des deux premières est deux fois plus élevé que ne le prévoit la théorie; il en est de même pour le rapport $\frac{\varepsilon_{ZZ}}{\varepsilon_{XX}}$ pour la raie A_1. On observe, en outre, une raie dont la fréquence varie entre 1122 et 1150 cm^{-1} et dont la polarisation est anormale. On y reviendra au paragraphe 3.

Vibrations de la molécule H_2O. — Elles seront étudiées en détail ailleurs [3]. Indiquons que le dénombrement et la mesure des intensités relatives des raies 1632 à 3 574 cm^{-1} ont permis de fixer l'orientation des molécules dans la maille.

3. **Étude des raies anormales.** — On observe, dans les spectres, trois raies qui se comportent de façon anormale lorsque l'on fait varier l'orientation du cristal.

1° La raie de vibration externe de type A_1 dont la fréquence varie de 60 à 71 cm^{-1}, mais dont le tenseur de polarisabilité dérivé demeure invariable.

2° La raie de type A_1 appartenant au groupe ν_4, dont la fréquence varie entre 619 et 623 cm^{-1} et dont le coefficient du tenseur varie également.

3° Une raie dont la fréquence varie de 1122 à 1150 cm^{-1} et que ses variations d'intensité et de polarisation ne permettent de classer dans aucun type de symétrie. De plus, elle ne correspond à aucune des vibrations fondamentales prévues dans le dénombrement théorique.

L'expérience oblige à admettre que, dans l'étude de l'effet Raman transversal, la fréquence des raies anormales dépend de l'orientation du vecteur d'onde $\vec{k} = \frac{1}{\lambda}$ des ondes élastiques qui produisent la diffusion de la lumière. Ce vecteur est situé dans le plan de diffusion, à 45° de la direction d'éclairement Ox et de la direction de diffusion perpendiculaire Oy. Nous désignerons l'orientation de $\vec{k}$ par rapport aux axes du cristal au moyen de l'angle θ qu'il fait avec l'axe sénaire OZ et de l'angle α que fait avec l'axe OX perpendiculaire à l'une des faces $m(10\bar{1}0)$ du prisme hexagonal la projection de $\vec{k}$ sur le plan XOY perpendiculaire à OZ.

Les conditions de symétrie limitent les variations de α entre 0 et 60°, θ pouvant varier de 0 à 180°. L'expérience montre que lorsque $\vec{k}$ est dirigé suivant les deux sens opposés d'une même direction dans le cristal, les deux spectres Raman obtenus sont identiques entre eux. Il suffit donc de faire varier θ entre 0 et 90°.

Des expériences faites pour les valeurs suivantes de θ et de α :

$$\theta = 90°, \quad \alpha = 30° \quad \text{et} \quad \alpha = 45°,$$

$$\theta = 45°, \quad \alpha = 0° \quad \text{et} \quad \alpha = 30°,$$

montrent que l'on obtient des spectres de diffusion identiques pour les deux valeurs de α correspondant à une même valeur de θ. Généralisant, nous avons pensé que le phénomène était indépendant de α et qu'il suffisait, pour étudier la variation de nos spectres, de donner à $\vec{k}$ les orientations θ comprises entre 0 et 90°, l'angle α étant quelconque.

Pour cela, nous avons taillé un cristal en forme de cylindre à base circulaire ayant OX pour axe de révolution vertical. En faisant tourner le cristal autour de OX, on a donné à θ 13 valeurs variant régulièrement de 7° 5 entre 0 et 90° (*fig.* 1).

La théorie classique de la polarisabilité permet de calculer les variations de l'intensité J et du facteur de dépolarisation ρ en fonction de θ pour les raies des divers types de symétrie. L'intensité des raies A_1

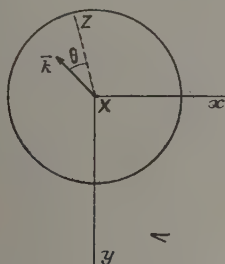


Fig. 1.

dont le coefficient ε_{ZZ} est seul différent de zéro (ce qui est le cas pour les raies 60-71 et 619-623) décroît symétriquement depuis $\theta = 0$ ou 90° jusqu'à une valeur nulle pour $\theta = 45°$. La valeur du facteur de dépolarisation ρ doit être infinie pour tous les angles. Ces prévisions théoriques sont en accord qualitatif avec l'expérience; les deux raies considérées ont un facteur de dépolarisation infini et leur intensité devient trop faible pour permettre de les déceler au voisinage de $\theta = 45°$. Cependant, tandis que le coefficient ε_{ZZ} du tenseur relatif à la raie 60-71 est invariable, celui qui se rapporte à la raie 619-623 varie de 3 pour $\theta = 0°$ à 9,5 pour $\theta = 90°$. Le tableau II montre les variations de fréquence des deux raies.

Tableau II.

θ...	0	7,5	15	...	60	67,5	75	82,5	90
ν...	72	72	73	...	61,5	61,5	61,5	60	60
ν'...	619,5	-	619,5	...	~625	~624	622,5	621,5	623

Les phénomènes sont plus compliqués pour la raie 1122-1150 cm⁻¹. Elle ne peut entrer dans aucun des types de vibration actifs en diffusion, comme le montrent les variations de son facteur de dépolarisation ρ (*fig.* 2) et de son intensité J (*fig.* 3) en fonction de θ. La figure 4 montre les variations de la fréquence de cette raie en fonction de θ; les points

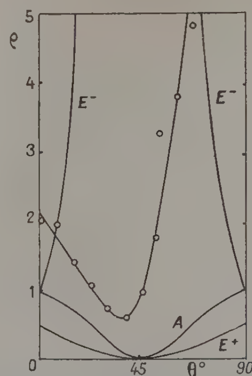


Fig. 2.

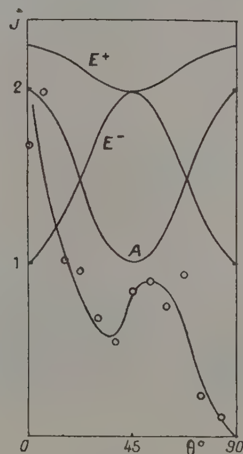


Fig. 3.

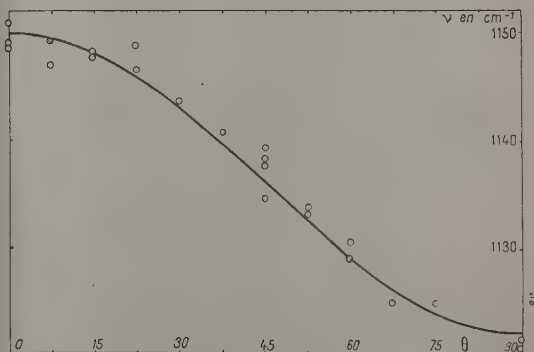


Fig. 4.

représentent les résultats expérimentaux, la courbe correspond à une variation de fréquence proportionnelle à $\cos^2 \theta$.

Des anomalies de même genre (raies surnuméraires et de polarisation anormale) ont déjà été constatées dans les spectres de divers autres cristaux, qui ont tous en commun d'être piézoélectriques : cristaux cubiques de chlorate de sodium [1], de bromate de sodium [1], de chlorure d'ammonium à basse température [4]; cristaux appartenant à d'autres systèmes, où se manifestent, en outre, des variations de la fréquence avec l'orientation : acide iodique [2], quartz [5] et sans doute sulfate de lithium hydraté [6]. Dans le cas du perchlorate de lithium, les propriétés piézoélectriques sont de révolution autour de l'axe sénaire, comme les variations du spectre de diffusion. La théorie de ces phénomènes indiquée pour le quartz [5] ne rend pas compte du comportement de la raie 1122-1150 cm^{-1}.

Manuscrit reçu le 31 janvier 1952.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Couture L. et Mathieu J. P. — *Ann. Physique*, 1948, **3**, 521; *C. R. Acad. Sc.*, 1952, **234**, 76.
[2] Couture-Mathieu L. et Mathieu J. P. — *C. R. Acad. Sc.*, 1950, **231**, 839.
[3] Couture-Mathieu L. et Mathieu J. P. — *Acta Crystall.* (sous presse).
[4] Couture-Mathieu L. et Mathieu J. P. — *J. Chim. Phys.*, 1952, **49**, 226.
[5] Mathieu J. P. et Couture-Mathieu L. — *C. R. Acad. Sc.*, 1952, **234**, 1961.
[6] Vassas-Dubuisson C. — *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **233**, 37[illegible]
[7] West C. D. — *Z. Kristall.*, 1934, **88**, 198.

LE JOURNAL DE PHYSIQUE ET LE RADIUM. TOME 13, MAI 1952, PAGE 274.

UNE CHAMBRE PHOTOGRAPHIQUE POUR APPAREIL D'OPTIQUE ELECTRONIQUE

Par L. LAFOURCADE et R. DARGENT.
Laboratoire d'Optique électronique du C. N. R. S. Faculté des Sciences de Toulouse.

Sommaire. — Cette chambre photographique permet d'observer sur un écran fluorescent des images ou des diagrammes de diffraction électronique et de les enregistrer sur cinq plaques photographiques de format 6,5 × 9, qui viennent les unes après les autres occuper exactement la position de l'écran.

1. **Description de la chambre.** — Le faisceau électronique émis par un canon à électrons à filament incandescent parcourt l'axe vertical de l'appareil et atteint les plaques ou l'écran fluorescent qui se trouvent à sa partie inférieure.

La chambre proprement dite est surmontée d'un tube d'acier T de section carrée dont la longueur, 30 cm environ, assure une distance convenable entre la chambre d'objet et la plaque photographique (*fig.* 1 et 2). Cette pièce a été obtenue par soudure à l'arc de ses quatre faces. Elle s'est révélée parfaitement étanche. C'est pour permettre l'usinage facile de la large fenêtre d'observation *f* de l'écran fluorescent et la mise en place d'accessoires que nous avons choisi la section carrée. Ce tube est raccordé par une canalisation de gros diamètre au groupe de vide (1).

(1) L'étanchéité de la bride de raccordement est assurée au moyen de deux cordons de soudure à l'étain, l'un à l'intérieur, l'autre à l'extérieur, ce qui a pu être réalisé, en employant deux soudures fondant à des températures différentes.

Les cinq plaques 6,5 × 9 et l'écran fluorescent de même format occupent les six faces identiques d'un prisme hexagonal d'axe horizontal (*fig.* 3) mobile autour de cet axe. Le chargement de l'appareil s'effectue en enlevant le tambour hexagonal tout entier par une porte latérale P. Les plaques sont introduites dans une glissière légèrement plus grande que la plaque et ouverte d'un seul côté. Deux petits ressorts droits *r* maintiennent la plaque appliquée contre le bord supérieur de la glissière, la position de la plaque est ainsi parfaitement définie et rigoureusement constante. La partie utile de la plaque est limitée par le contour intérieur de la glissière. Celle-ci présente un biseau afin d'éviter que la plaque ne reçoive les électrons qui seraient réfléchis et les rayons X qui seraient émis par un bord vertical. Le côté fermé de la glissière présente deux dégagements *d* qui permettent d'extraire les plaques exposées sans toucher la surface sensible.

Grâce à l'utilisation de plaques orthochromatiques à grain fin ou de plaques au collodion, nous pouvons

effectuer toutes les opérations de chargement et de développement à la lumière rouge. Néanmoins,

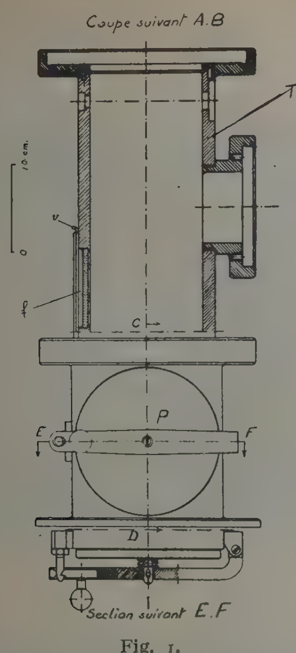


Fig. 1.

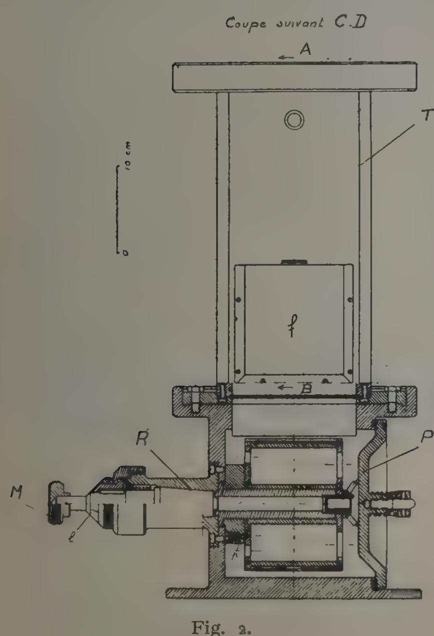


Fig. 2.

un dispositif permet de mettre automatiquement le tambour dans la position correcte sans le secours d'aucun éclairage; l'extrémité de l'axe qui reçoit le tambour, porte un ergot maintenu en saillie par l'action d'un ressort, et qui vient s'engager dans un logement pratiqué dans la flasque du tambour.

On commande de l'extérieur la rotation du porte-plaques, en agissant sur le bouton molleté M. Un rodage conique graissé R permet d'assurer l'étanchéité au vide de cette commande. Pour effectuer avant chaque cliché une nouvelle mise au point sur l'écran et pour revenir automatiquement sur la première plaque non exposée, nous avons imaginé un compteur de vues constitué essentiellement par un dispositif à friction. Le bouton molleté M qui entraîne le porte-plaques, entraîne aussi et dans un

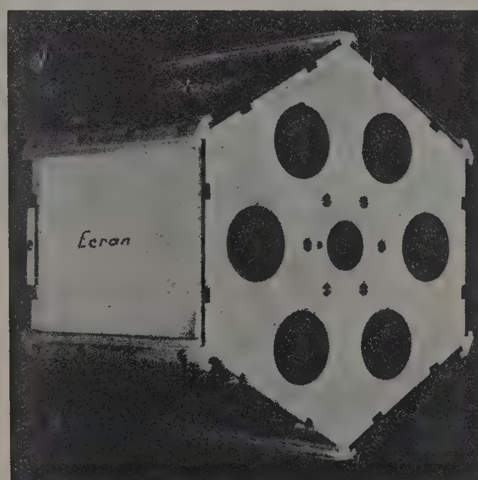


Fig. 3.

seul sens, une pièce qui porte six rainures radiales marquées dans l'ordre E, 1, 2, 3, 4, 5 se déplaçant devant un repère fixe. L'opérateur sait donc, à tout instant, qu'elle est la dernière plaque exposée. D'autre part, la mise en place des plaques se fait automatiquement sans avoir besoin de vérifier que le trait numéroté se trouve exactement en face du repère fixe. Au moment où une plaque arrive en position, six petits pistons *p* repoussés chacun par un ressort pénètrent simultanément dans six logements correspondants pratiqués dans la flasque en acier du tambour porte-plaques. Le reste de cette pièce est en alliage léger. Il faut exercer sur le tambour M, un effort supplémentaire, pour dépasser cette position si bien que cette opération peut se faire dans l'obscurité, le tambour s'arrêtant en quelque sorte de lui-même à l'instant où une plaque ou bien l'écran se trouvent dans la bonne position; ce n'est que lorsque l'opérateur ne se rappelle plus combien de plaques ont été impressionnées qu'il

doit allumer une lampe rouge et utiliser les repères dont il a été question [2].

La fenêtre d'observation *f* est munie d'un volet *v* qui permet de prendre les clichés quand la salle est normalement éclairée, mais il est préférable de rester en lumière rouge, afin que l'œil garde toute sa sensibilité s'il y a lieu d'observer de nouveau une image ou un diagramme sur l'écran fluorescent.

L'étanchéité de la porte de grand diamètre P qui permet d'extraire l'ensemble du porte-plaques est assurée au moyen d'un anneau de caoutchouc.

La fenêtre d'observation *f* a la forme d'un carré de 10 cm de côté, elle permet de voir l'ensemble de l'écran fluorescent, quelle que soit la distance de l'œil de l'opérateur. Comme, d'autre part, cette fenêtre se trouve très près de l'écran, il est possible de placer l'œil à 12 ou 15 cm de l'image si c'est nécessaire afin de faire une mise au point soignée.

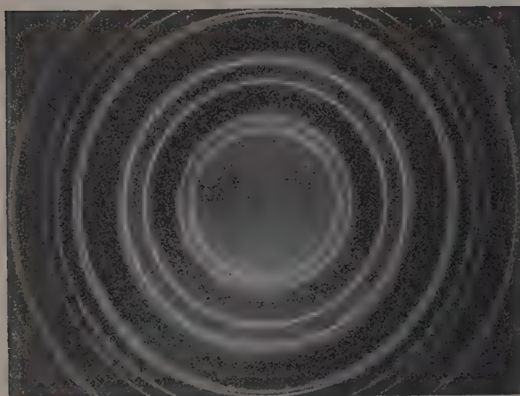


Fig. 4.

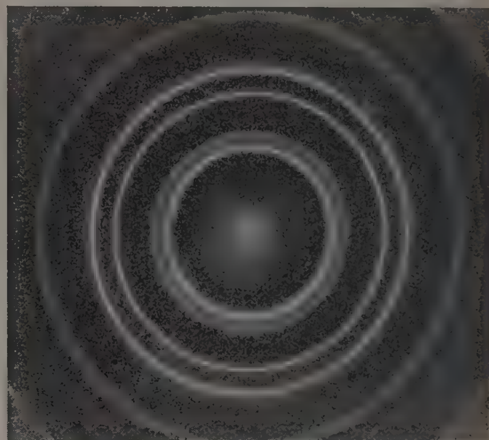


Fig. 5 *a*.

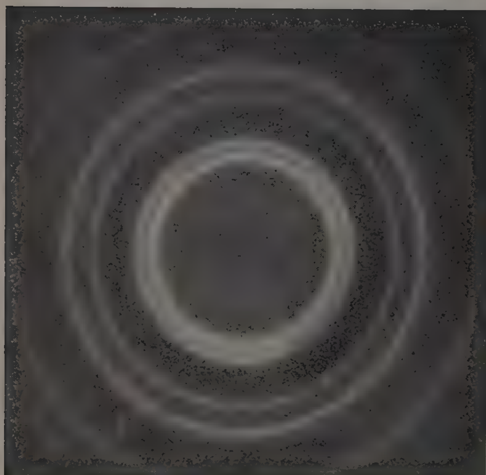


Fig. 5 *b*.



Fig. 5 *c*.

2. **Conditions d'utilisation et résultats.** — Cette chambre fonctionne depuis deux ans au Laboratoire et elle répond parfaitement à l'usage qui avait été prévu pour elle.

Cet appareil est utilisé en particulier, pour étudier les conditions de cristallisation et de recristallisation des lames minces obtenues par évaporation thermique. Les diagrammes de diffraction élec-

[2] Le faisceau électronique est arrêté par un volet pendant qu'on effectue la rotation du tambour.

tronique obtenus par transmission font l'objet d'un enregistrement au microphotomètre; les distances entre les maxima de la courbe permettent de déterminer les paramètres réticulaires et la largeur de ces maxima, une valeur moyenne de la grosseur des cristaux.

Il est intéressant dans ce cas de disposer de plusieurs clichés pour une même préparation, soit simplement pour avoir des recoupements, si ces clichés correspondent à des parties différentes de la préparation, soit pour avoir des clichés plus ou moins exposés de façon à choisir ensuite celui qui convient au meilleur emploi du microphotomètre utilisé. Comme la densité optique de ces diagrammes diminue rapidement lorsqu'on s'écarte de la région centrale vers les bords, il peut arriver que la loi du noircissement ne soit pas la même en deux points différents de la plaque et, par suite, que la densité optique ne soit pas partout proportionnelle à l'intensité des faisceaux électroniques qui forment chaque anneau, il est donc utile de disposer de plusieurs clichés correspondant à des temps de pose différents.

Si la tension est bien stabilisée, la distance de l'échantillon à la plaque étant fixe, il est possible de mettre en évidence de petites différences entre les paramètres cristallins de deux préparations.

A titre d'exemple, nous donnons quelques diagrammes obtenus avec cet appareil. La figure 4 représente le diagramme d'une feuille très mince d'aluminium obtenue par évaporation thermique et à laquelle on a fait subir un recuit de 2 h à la température de 300°; la largeur moyenne des anneaux mesurés au microphotomètre est légèrement supérieure à 1/10ᵉ de millimètre. Sur cette largeur, 4/100ᵉ de millimètre au moins sont dus aux dimensions transversales du spot central formé sur la plaque. Les cristaux qui constituent la préparation sont donc relativement gros (300 Å au moins). Les figures 5 *a* et 5 *b* donnent les diagrammes respectifs d'un film d'or et d'un film de palladium obtenus par évaporation thermique; la figure 5 *c* représente le diagramme d'un échantillon obtenu en évaporant dans des conditions identiques un alliage d'or et de palladium à 60 pour 100 d'or. Ce dernier diagramme présente des anneaux plus larges; les cristaux obtenus, en évaporant l'alliage, sont donc plus fins. C'est là, une des raisons qui ont conduit à utiliser cet alliage à la place de l'or pur pour l'exécution des ombrages sur les préparations destinées au microscope électronique.

Cette chambre photographique a été exécutée avec un grand soin par le Laboratoire central de l'Armement sous la direction de M. l'Ingénieur général Nicolau et de M. l'Ingénieur militaire Cain auxquels nous adressons nos plus vifs remerciements, ainsi qu'à leurs collaborateurs pour la compétence dont ils ont fait preuve dans l'exécution de ce travail.

Manuscrit reçu le 17 janvier 1952.

PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES DES ALLIAGES NICKEL-LANTHANE

Par J. WUCHER,
Laboratoire de Magnétisme, Strasbourg.

Sommaire. — L'étude thermomagnétique des nickel-lanthane a conduit aux résultats suivants :

A partir du nickel, les deux métaux forment une suite de solutions solides jusqu'à 9 pour 100 atomique de lanthane. Il y a cependant tendance à la formation de Ni_5La aux dépens de la solution.

Dans les solutions, les trois électrons de valence du lanthane bouchent progressivement les trous de la couche 3 *d* du nickel et provoquent ainsi la disparition du ferromagnétisme vers 20 atomes pour 100 de lanthane.

L'étude paramagnétique de Ni_4La et Ni_3La montre que le nickel possède dans ces composés un moment atomique notable; dans des solutions solides de même composition, tous les trous seraient bouchés et le moment serait nul.

Ni_4La et Ni_3La sont instables et semblent former les équilibres suivants :



$$A + Ni_5La \rightleftharpoons Ni_4La \quad \text{et} \quad A + Ni_4La \rightleftharpoons Ni_3La.$$

Le composé défini Ni_2La est pyrophorique; son coefficient d'aimantation $\chi = 3,16 . 10^{-6}$ reste invariable entre 20°C et 700°C, ce qui paraît exclure l'antiferromagnétisme.

L'addition de moins de 25 pour 100 atomique de nickel ne change pas notablement la susceptibilité du lanthane. On en déduit, pour le nickel à couche électronique complète, une susceptibilité atomique χ_A voisine de $50 . 10^{-6}$.

Introduction. — Dans le cas des alliages nickel-lanthane, où l'un des éléments est ferromagnétique, le diagramme de fusion, les études de structure aux rayons X et au microscope métallographique peuvent être complétées utilement par l'étude des propriétés magnétiques. En effet, les limites des solutions solides, la formation de composés définis ou la présence d'un alliage à deux phases se déduisent souvent du comportement magnétique des alliages en fonction de la concentration atomique des composants.

Lanthane pur. — Le lanthane très pur dont nous disposions a été préparé au laboratoire des terres rares de M. Trombe (1). Les mesures de coefficients d'aimantation, effectuées sur divers échantillons d'une même tige de lanthane brut d'électrolyse, ont donné les résultats suivants :

		Champ voisin de		
		8 600.	7 700.	6 500.
Échantillon I......	$\chi . 10^6 =$	$0,85_4$	$0,85_8$	$0,85_9$
» II.....		$0,95_7$	$0,95_7$	$0,96_7$
» III....		$0,92_7$	$0,95_4$	$0,98_9$
» IV.....		$0,87_2$	$0,88_0$	$0,88_2$

Il suffit d'admettre la présence dans l'échantillon ou à sa surface de quelques millionièmes de fer métallique pour expliquer les écarts entre les valeurs observées et la variation de χ avec le champ. Cette variation est insensible dans le cas du premier échantillon.

Nous admettrons finalement pour la susceptibilité du lanthane pur la valeur

$$\chi = 0,85 . 10^{-6}.$$

Diagramme de fusion nickel-lanthane. — R. Vogel et W. Fülling [1] ont étudié le diagramme de fusion des alliages nickel-lanthane et rencontré les composés définis Ni_5La, Ni_4La, Ni_3La, Ni_2La et $NiLa_3$. Des points d'eutexie ont été trouvés entre Ni et Ni_5La à 90,4 pour 100 atom. de Ni, entre Ni_2La et NiLa à 54 pour 100 atom. de Ni, entre NiLa et $NiLa_3$ à 32 pour 100 atom. de Ni et entre $NiLa_3$ et La à 18 pour 100 de Ni.

A l'aide de ces données, nous avons tracé l'allure générale du diagramme de fusion dans la figure 1.

Nous avons obtenu les divers alliages étudiés par fusion des constituants au four à haute fréquence sous faible pression d'argon, dans des creusets en alumine frittée. Nous n'avons pas décelé d'attaque des parois du creuset et les pertes de poids subies au cours de la fusion étaient négligeables. Tous les alliages obtenus ont été gardés sous vide ou scellés dans des tubes de quartz.

(1) Nous adressons à M. Trombe nos très vifs remerciements pour avoir bien voulu mettre à notre disposition ce précieux métal.

Calcul des moments. — Les moments ferromagnétiques et paramagnétiques sont rapportés à la totalité du nickel présent dans l'alliage.

Alliages riches en nickel. — Les alliages plus riches en nickel que le composé défini Ni_5La sont

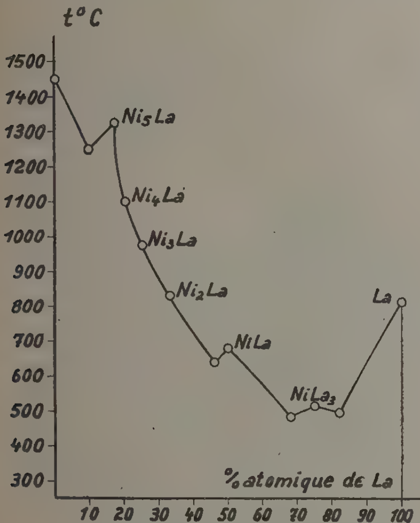


Fig. 1. — Diagramme de fusion NiLa.

tous ferromagnétiques. Dans le tableau ci-dessous sont rassemblées les valeurs des points de Curie ferromagnétiques des alliages étudiés.

Pour cent atomique de La	0	1,35	3,38	5,0
	7,1	10,0	12,5	13,7
θ_f (°K)	631	604	533	470
	434	357	347	350

En portant ces points de Curie en fonction du pourcentage atomique de lanthane on obtient la figure 2. On voit que le point de Curie diminue d'abord linéairement et qu'il devient constant à partir de 9 pour 100 atom. de La.

D'après les résultats de Sadron [2] relatifs aux solutions solides étendues d'un métal non magnétique dans le nickel, on peut s'attendre à ce que chaque atome de lanthane trivalent introduit dans le nickel bouche trois trous dans sa couche *d*, ce qui conduirait à l'annulation du point de Curie pour 20 pour 100 atom. de La.

La droite expérimentale obtenue s'extrapole assez bien vers 21 pour 100; nous en concluons que le nickel et le lanthane forment une suite ininterrompue de solutions solides jusqu'à 9 pour 100 atom. de La.

L'examen au microscope métallographique des divers alliages confirme les résultats magnétiques (²).

Les alliages à 1,35, 3,38, 5,0 pour 100 atom. de La avaient un aspect homogène, tandis que les alliages à 12,5 et 13,7 pour 100 présentaient nettement deux phases.

Tous les alliages étudiés avaient été préalablement recuits pendant 36 h à 600° C sous faible pression d'argon.

Pour trois alliages à 6,4, 8,5 et 11,06 pour 100 atom. de La respectivement, nous avons trouvé un comportement différent de celui qui vient d'être décrit. Leurs points de Curie ferromagnétiques sont voisins de celui du nickel pur et l'examen au miscroscope révèle très nettement deux phases.

Pour cent atomique de La	6,4	8,5	11,06
θ_f (°K)	605	611	590

Ces alliages, chauffés au delà de leur point de fusion, ont subi une trempe ou un refroidissement lent sans changement notable de leur point de Curie.

La présence de deux phases et la valeur du point de Curie nous a conduit à admettre la présence d'un

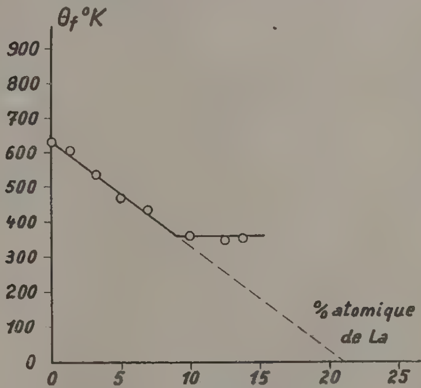


Fig. 2. — Variation de θf en fonction du pourcentage atomique de lanthane.

mélange de nickel et d'un composé défini Ni_xLa. Dans ce cas, la mesure même grossière du moment ferromagnétique donne des indications sur le pourcentage de nickel ferromagnétique, la contribution éventuelle du composé Ni_xLa étant négligeable.

Le pourcentage de Ni libre étant ainsi déterminé, on peut calculer aisément la composition de Ni_xLa pour chacun des alliages. Les mesures faites dans ce but ont conduit aux résultats suivants :

Alliage	$Ni_{93,6}La_{6,4}$	$Ni_{91,5}La_{8,5}$	$Ni_{89}La_{11}$
Ni ferromagn.	Ni_{58}	$Ni_{49,3}$	$Ni_{36,8}$
Ni_xLa	$Ni_{35,6}La_{6,4}$	$Ni_{42,2}La_{8,5}$	$Ni_{52,2}La_{11}$
	ou $Ni_{5,5}La$	ou $Ni_{5,0}La$	ou $Ni_{4,8}La$

(²) Le réactif employé pour attaquer les surfaces convenablement polies avait la composition suivante : 65 cm³ NHO_3 (1,40), 18 cm³ CH_3COOH et 17 cm³ H_2O.

Les deux phases rencontrées dans ces trois alliages semblent donc être du nickel et le composé Ni_5La.

Nous avons finalement encore étudié le comportement paramagnétique des alliages à 5,0 et 6,4 pour 100 atom. de La.

L'alliage à 5,0 pour 100 à phase unique suit le loi de Weiss entre 300° et 520°C avec un point de Curie paramagnétique $\theta_p = +220°$ C et un moment de 6,1 magnétons de Weiss.

L'alliage à 6,4 pour 100 atom. de La est à deux phases.

Nous admettons la présence de 46,6 pour 100 spécifique de Ni_5La, dont la susceptibilité variable avec la température est à retrancher de la susceptibilité de l'alliage. On obtient une belle droite de Weiss entre 360° et 510° C avec $\theta_p = +334°$ C et $\mu_W = 8{,}9$. Ce moment rapporté aux atomes de nickel libre est celui que possède le nickel pur au-dessus de 900° C [3].

Ni_5La. — Le composé défini Ni_5La est de structure hexagonale [4]. Une couche d'atomes de nickel alterne avec une couche d'atomes de nickel et de lanthane. Les distances entre proches voisins sont La—La, 4,00 Å; La—Ni, 2,86 Å et Ni—Ni, 2,46 Å.

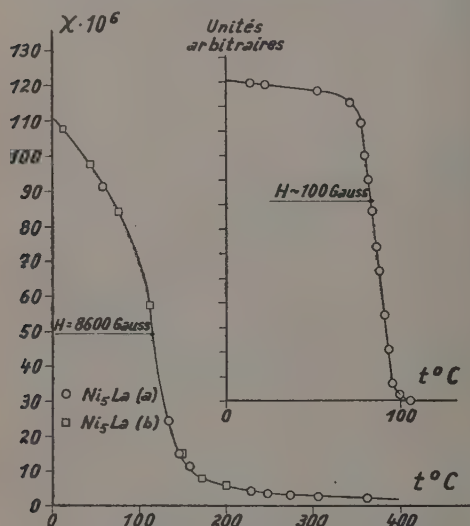


Fig. 3.

Ni_5La est faiblement ferromagnétique. Dans un champ d'une centaine de gauss, on observe un point de Curie très net à 97° C (*fig.* 3). Dans un champ de 8600 gauss, les susceptibilités varient en fonction de la température suivant la courbe II de la figure 3. La correction du faible paramagnétisme du lanthane a été faite en admettant que

$$\chi_{La} = +0{,}85 \cdot 10^{-6}.$$

Des mesures faites sur deux échantillons préparés séparément coïncident à la précision des mesures et sont réversibles. A température ambiante, la susceptibilité de Ni_5La dépend du champ de la façon suivante :

H (gauss).....	8 600	7 700	6 500
$\chi \cdot 10^6$........	107,5	114,6	126,8

Des mesures complémentaires faites à la température de l'azote liquide ont permis de calculer un moment ferromagnétique de 0,05 magnéton de Weiss par atome de nickel, en appliquant les lois

$$\sigma_H = \sigma_\infty \left(1 - \frac{a}{H}\right) \quad \text{et} \quad \sigma_T = \sigma_0 (1 - b T^2).$$

Un alliage de composition voisine de Ni_5La (16,67 pour 100) a été préparé avec 17,64 pour 100 atom. de La. La représentation en $\frac{1}{\chi}$, T donne deux droites, l'une avec

$$\mu_W = 5{,}86 \quad \text{et} \quad \theta_p = -18° \text{C}$$

entre 15 et 240° C, l'autre avec

$$\mu_W = 6{,}86 \quad \text{et} \quad \theta_p = -113° \text{C}$$

entre 240 et 510° C (tableau I).

TABLEAU I.

t (°C).	χ_{corr}	$\chi_M (T - \theta_1)$.	$\chi_M (T - \theta_2)$.
16,2...............	57,38	0,197₄	–
85,5...............	19,12	0,198₃	–
134,2...............	12,95	0,197₃	–
270,8...............	7,04₂	–	0,270₁
292,3...............	6,67₆	–	0,270₃
379,2...............	5,47₄	–	0,269₃
508,8...............	4,34₆	–	0,270₁

Ni_4La et Ni_3La. — Les composés définis Ni_4La et Ni_3La, examinés au microscope métallographique présentent un aspect homogène.

Après un recuit de 30 h à 700° C, les résultats de l'étude thermomagnétique sur ces deux composés ont été les suivants (tableau II).

Pour Ni_4La, la représentation en $\frac{1}{\chi}$, T donne deux droites avec un coude à —113° C. Par abaissement de la température, le moment passe de 5,38 μ_W à 4,19 μ_W et le point de Curie paramagnétique de — 152° K à — 28° K.

Le composé Ni_3La montre un comportement analogue. Le coude observé se situe à — 117° C, tandis que la valeur du moment passe de 5,46 μ_W à 4,00 μ_W avec des points de Curie paramagnétique de — 322° K et — 101° K respectivement. Dans le cas d'une solution solide entre le lanthane et le

nickel, on s'attendrait à un moment paramagnétique nul pour des alliages à plus de 20 pour 100 atom. de La. Les atomes de nickel auraient vu compléter leur couche 3 *d* par l'apport des électrons extérieurs du lanthane .La formation de composés définis tels que Ni_4La et Ni_3La entraîne une répartition électronique différente, donnant naissance à des atomes de nickel porteurs de moment.

TABLEAU II.

t(°C).	χ_{corr}.	$\chi_M(T-\theta_1)$.	$\chi_M(T-\theta_2)$.
	Ni_4La.		
18,1	3,627	–	–
— 71,6	4,458	0,1474	–
— 63,2	4,336	0,1468	–
— 45,8	4,143	0,1470	–
— 27,7	3,948	0,1467	–
— 173,7	7,539	–	0,0894
— 121,4	5,266	–	0,0892
— 114,7	5,151	–	0,0895
— 98,3	4,801	0,1468	–
— 84,0	4,594	0,1466	–
	Ni_3La.		
17,9	2,354	0,1515	–
— 7,2	2,442	0,1508	–
— 39,5	2,602	0,1518	–
— 42,0	2,615	0,1518	–
— 70,1	2,737	0,1509	–
— 84,6	2,823	0,1514	–
— 180,8	4,000	–	0,0811
— 152,5	3,512	–	0,0816
— 142,8	3,337	–	0,0810
— 131,8	3,210	–	0,0816
— 127,4	3,166	–	0,0822

Après un séjour d'une dizaine de jours à température ambiante et sous vide, les propriétés magnétiques de Ni_4La et de Ni_3La avaient changé. Pour un champ de 8600 gauss, les susceptibilités portées en fonction de la température (*fig.* 4) diminuent rapidement pour décroître normalement à partir de 200° C. Dans la même figure nous avons porté à titre de comparaison la variation de χ pour le composé Ni La, ce qui permet de voir l'analogie certaine des trois courbes.

L'interprétation de ce comportement doit être cherchée dans l'existence de points péritectiques pour ces alliages et la formation d'équilibre de la forme



$$A + Ni_5La \rightleftharpoons N_4La \quad \text{et} \quad A + Ni_4La \rightleftharpoons Ni_3La.$$

Ni_2La. — Le composé défini Ni_2La possède une structure cubique à faces centrées du type C_{15}. L'alliage obtenu s'est révélé être très pyrophorique.

La susceptibilité de Ni_2La reste constante dans tout l'intervalle exploré entre + 20 et + 700° C avec la valeur de $\chi = 3,16 . 10^{-6}$. Il est peu vraisemblable que ce paramagnétisme indépendant de la température résulte d'un antiferromagnétisme. Le point λ, dans un composé comme Ni_2La serait situé probablement au-dessous de 700° C.

Le paramagnétisme en question peut être attribué, au moins en partie, à la couche électronique *d* du nickel qui, dans l'alliage Ni_2La doit être complète.

NiLa. — La variation de la susceptibilité de l'alliage NiLa a été portée dans le tableau III. Par abaissement de la température, χ augmente de plus

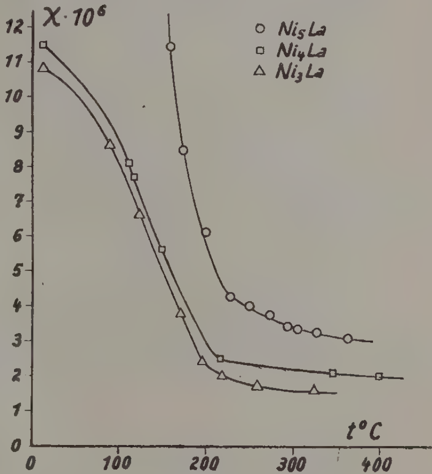


Fig. 4.

en plus rapidement et dépend du champ à la température de l'air liquide.

TABLEAU III.

NiLa.

t(°C).	16,9.	— 121,3.	— 114,0.	— 95,5.	— 84,6.	— 70,3.
$\chi . 10^6$...	$2,17_2$	$3,39_7$	$3,24_2$	2,931	2,794	2.671
t(°C).	— 68,1.	+ 4,8.	— 181.3.	— 128.5.	— 137,4.	— 152,0.
$\chi . 10^6$...	2,648	2,217	10,29	$3,59_4$	$3,98_2$	$5,11_4$

H (gauss).......	8 600.	7 700.	6 500.
$\chi . 10^6$ à — 181,3° C....	10,29	10,49	10,59

Alliages riches en lanthane. — Nous avons finalement mesuré les susceptibilités du composé défini $NiLa_3$, de l'eutectique $NiLa_3$—La à 82 pour 100 atom. de La et un alliage à 99 pour 100 atom. de La.

Pour $NiLa_3$ on trouve $\chi = 0{,}88.10^{-6}$ et $\chi = 0{,}89_2.10^{-6}$ pour des températures de + 300° C et — 150° C respectivement. La susceptiblité est pratiquement indépendante de la température.

Pour l'eutectique $NiLa_3$—La, χ varie légèrement et passe de $0{,}780.10^{-6}$ à 16° C à la valeur 0,89 pour — 193° C.

L'alliage à 1 pour 100 atom. de Ni a une susceptibilité de $0{,}896.10^{-6}$ à 288° K et de $1{,}156.10^{-6}$ à 81,7° K. Cette variation thermique est moins rapide que celle qui a été observée par Trombe [5] sur le lanthane ($1{,}25.10^{-6}$ à 260° K et $1{,}66.10^{-6}$ à 150° K).

Les $\chi.10^6$ des trois derniers alliages à la température ordinaire : 0,88, 0,78 et 0,896 présentent entre eux des différences inférieures à celles qui ont été relevées sur les quatre échantillons de lanthane étudiés au début : 0,85, 0,96, 0,93, 0,87. La moyenne des $\chi.10^6$ pour ces trois alliages, 0,85, coïncide avec le nombre adopté pour le lanthane pur.

Nous arrivons à ce résultat surprenant que l'addition de moins de 25 pour 100 atom. de Ni *n'affecte pas* notablement *la susceptibilité du lanthane.*

Le nickel, dans ces alliages à forte concentration électronique, possède donc, comme le lanthane un coefficient d'aimantation indépendant de la température, voisin de $0{,}85.10^{-6}$ soit, pour l'atome, $\chi_A = 50.10^{-6}$.

Il est bien connu que les atomes à couche magnétique vide ou complète possèdent un paramagnétisme faible et indépendant de la température [6]. La valeur précédente, 50.10^{-6}, convient parfaitement à un atome de nickel possédant une couche $3d$ complète.

Des mesures effectuées sur une nickeline NiAs contenant quelques millièmes d'arséniure de fer, G. Foëx [6] a déduit, pour l'atome neutre de nickel,

$$\chi_A \leq 100.10^{-6}.$$

Divers complexes du nickel étudiés par Malatesta [7], par Ray et Bhar [8] ont donné pour $10^{-6}\chi_A$ les valeurs suivantes : 40, 29, 18, 28, 120, 20 et 35.

Il ressort d'une étude de Alder [9] que dans les nickel-cuivre riches en cuivre, le nickel possède, comme dans les nickel-lanthane, un coefficient d'aimantation faible et indépendant de la température. Les valeurs observées pour les alliages à 9,37 pour 100 et 3,15 pour 100 spéc. de Ni sont $0{,}21.10^{-6}$ et $0{,}17.10^{-6}$. En admettant que le nickel possède dans ces alliages le même coefficient d'aimantation que dans les nickel-lanthane, on calcule pour le cuivre

$$\chi.10^6 = 0{,}14 \quad \text{et} \quad 0{,}15$$

au lieu de la valeur trouvée par Alder sur le cuivre pur, — 0,037. L'identité des propriétés du nickel dans les deux séries d'alliages reste douteuse.

Les résultats exposés dans le présent article montrent une fois de plus que l'étude magnétique des alliages fournit des données utiles sur la répartition des électrons périphériques entre chacun des constituants de l'alliage et le gaz électronique.

Manuscrit reçu le 5 janvier 1952.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Vogel R. et Fülling W. — *Z. Metallforschung*, 1947, **2**, 97.
[2] Sadron C. — *Ann. de Physique*, 1932, **17**, 371.
[3] Sucksmith et Pearce. — *Proc. Roy. Soc.* London, 1938, **170**, 551.
[4] Novotny. — *Z. Metallkunde*, 1942, **34**, 247.
[5] Trombe F. — *C. R. Acad. Sc.*, 1934, **198**, 1591.
[6] Foëx G. — *J. Physique Rad.*, 1938, **9**, 37.
[7] *Gazz. Chim. Ital.*, 1937, **67**, 738.
[8] *J. Indian Chem. Soc.*, 1928, **5**, 497.
[9] *Thèse*, Zurich, 1916.

SUR UN SCHÉMA DE L'ÉLECTRON

Par JÉSUS M. THARRATS VIDAL,
Séminaire de Physique Mathématique à l'Université de Barcelone, Espagne.

Sommaire. — Le problème de l'énergie infinie de l'électron ponctuel a détruit la confiance en l'Électrodynamique classique. Celle-ci, d'autre part, a voulu s'imposer avec l'électron sphérique, mais sans résoudre, d'une manière satisfaisante, l'origine de la mystérieuse pression de Poincaré.

On peut toujours résoudre ce problème en faisant appel aux autres électrodynamiques [par exemple en introduisant une électrodynamique non linéaire ([1])], lesquelles résolvent la question indirectement. La fonction de Dirac ne donne pas plus que ce que l'on s'était proposé : faire en sorte qu'une intégrale d'un domaine ponctuel ne soit pas nulle; et donc elle ne peut pas résoudre ni le problème de l'énergie infinie, ni le problème du rayon de l'électron.

Nous allons donner un modèle d'électron avec les caractéristiques suivantes :

I. C'est un modèle ponctuel, donc il a un caractère topologique conforme aux théories microscopiques qui n'acceptent plus les modèles métriques.

II. Bien qu'il soit ponctuel, *il a une énergie finie.*

III. Il vient d'une distribution continue de densité électrique et il a une charge non nulle bien qu'il se réduise à un point.

IV. On obtient directement le rayon classique de l'électron au moyen d'un voisinage spécial de l'électron.

V. La fonction de distribution de densité électrique ayant une dissymétrie, on obtient deux états d'un même électron que l'on peut identifier avec les deux états de l'électron dus aux deux valeurs du spin.

VI. On obtient aussi deux états de charge de l'électron, qui correspondent à l'existence des électrons positif et négatif.

VII. Finalement, il existe un rapport entre ce schéma et les théories quantiques.

D'après une idée de Darwin qui a pris de l'impor-ance dans la théorie de la lumière de de Broglie [2], e champ électromagnétique a un caractère complexe. l semble, à première vue, que les champs ne seraient pas ainsi observables, mais la difficulté a fort bien été résolue par Louis de Broglie.

D'autre part, comme la densité électrique ρ est iée aux champs $\left(\text{par exemple } \rho = \frac{1}{4\pi}\operatorname{div}\vec{E} \text{ dans}\right.$ a théorie de Maxwell-Lorentz$\left.\right)$, on doit penser que $\rho(x_1, x_2, x_3)$ ainsi que $v_i = \dot{x}_i$, et x_i sont des nombres complexes.

Ceci exige un espace E_6 à six dimensions (trois axes imaginaires) dans lequel se produisent les phénomènes électromagnétiques. (Ceci aussi est conforme au « principe de relativité étendu » de Proca [3] où la charge est introduite d'une manière dissymétrique dans l'invariant ds^2).

L'électron étant ponctuel dans notre théorie, et pour ne pas trop compliquer la question, nous nous bornerons à étudier une distribution de charges unidimensionnelle.

Ainsi, dans la présente théorie, on doit concevoir e champ comme formé par une distribution de charges, donnée au moyen d'une correspondance entre les points du plan complexe et la densité électrique complexe. L'axe $x\,(z = x + iy)$ est l'axe observable. Pour trouver les électrons d'une manière naturelle à partir de cette distribution continue de charges, nous allons faire deux conventions :

1. Pour avoir la charge totale dans un domaine V, on formait, jusqu'à présent, l'intégrale

$$Q = \iiint_V \rho(x_1 x_2 x_3)\,\mathrm{d}V$$

et dans une distribution de charges unidimensionnelle :

$$Q = \int_b^a \rho(x)\,\mathrm{d}x \qquad (1)$$

Maintenant, dans le plan complexe cette forme n'a pas de sens parce qu'elle donnerait un nombre complexe

$$Q = \iint_D i\rho(z)\,\mathrm{d}x\,\mathrm{d}y$$

pour la charge observable d'un domaine D.

D'ailleurs, si l'on tient compte du fait que la distribution de charges est donnée au moyen d'une

fonction complexe, l'intégration dans l'axe x causerait une dissymétrie et parfois Q serait un nombre complexe, parce que $\rho(x)$ n'est pas toujours une fonction réelle.

Donc, *la façon la plus naturelle de généraliser* [1], *c'est de substituer à des intégrales simples, des intégrales curvilignes fermées.*

2. Sauf aux points occupés par les électrons, *la correspondance* $z' = \rho(z)$ *est analytique et les électrons sont des points singuliers de la fonction* $\rho(z)$.

Cette façon de définir les électrons donne immédiatement un nouveau schéma de l'électron : en effet, si z_0 est un point singulier essentiel, selon le théorème de Picard, il existe une correspondance entre un domaine qui entoure un point singulier essentiel et tout le plan z' (sauf en trois points de z') *quelque petit que soit ce domaine.* Si z_0 est un pôle, il existe une correspondance entre les points du contour d'un domaine qui entoure z_0 et les points du contour d'un domaine dont les rayons vecteurs sont aussi grands que l'on veut, *quelque petit que soit ce domaine.* De ceci, on déduit : *l'électron est un infiniment petit potentiel,* mais non actuel. Donc, si z_0 est un point singulier essentiel, nous dirons de l'électron, bien qu'il soit ponctuel, qu'il a une densité de volume de charge; par contre, si z_0 est un pôle nous dirons qu'il a une densité superficielle. L'une ou l'autre forme de l'électron dépend, ce que nous allons voir, de la façon dont on choisit la loi d'attraction entre deux électrons.

Afin d'avoir les mêmes caractéristiques pour tous les électrons, nous allons former $\rho(z)$ comme il suit : en développant ρ en série de Laurent autour d'un point singulier, on a, en général :

$$\rho(z) = \ldots + A_n(z - z_0)^n + \ldots + A_1(z - z_0) + A_0 + \frac{A_{-1}}{z - z_0} + \ldots + \frac{A_{-m}}{(z - z_0)^m} + \ldots \quad (2)$$

Soit k électrons aux points $z_0, z_1, \ldots, z_{k-1}$, on prend, en (2), les coefficients A_l de telle façon que l'on ait, pour le rayon extérieur de convergence de la série (2) :

$$R > | z_l$$

La fonction

$$\begin{aligned} \rho(z) = {} & \ldots + A_n(z - z_0)^n + \ldots + A_1(z - z_0) + A_0 \\ & + \frac{A_{-1}}{z - z_0} + \ldots + \frac{A_{-m}}{(z - z_0)^m} + \ldots \\ & + A_n(z - z_1)^n + \ldots + A_1(z - z_1) + A_0 \\ & + \frac{A_{-1}}{z - z_1} + \ldots \\ & \ldots\ldots\ldots\ldots\ldots \\ & + A_n(z - z_{n-1})^n + \ldots + A_1(z - z_{n-1}) + \ldots \\ = {} & \rho_0(z) + \rho_1(z) + \ldots + \rho_{n-1}(z) \end{aligned}$$

représente la distribution de la densité de charge formée par les k électrons.

De tout ce que nous avons exposé, on déduit :

a. Pour la charge totale d'un domaine qui ne contient aucun électron :

$$Q_N = \oint \rho(z)\,dz = 0. \quad (3)$$

b. Pour la charge d'un électron :

$$Q = \oint_{z_0} \rho(z)\,dz = 2\pi i A_{-1}. \quad (4)$$

c. Pour la charge de k électrons :

$$Q_k = \Sigma 2\pi i A_{-1} = kQ.$$

d. Calculons le champ produit par la charge d'un domaine D, sur un point z_r.

Selon notre théorie, on doit substituer

$$E = -\oint_D \frac{\rho(z)}{(z - z_r)^2}\,dz; \quad (5)$$

à

$$E = -\int_b^a \frac{\rho(x)}{(x - x_r)^2}\,dx.$$

Dans le cas où D n'a pas de points singuliers (électrons), il semble, à première vue, que ceci

$$E = -2\pi i \rho'(z_r)$$

constitue un défaut de la théorie; néanmoins, cette difficulté peut disparaître facilement : en effet, ou bien hors de D il n'existe pas de champ et donc ρ n'est pas continue au contour de D (c'est-à-dire non analytique), ou bien ρ n'a pas de points singuliers dans tout le plan; d'où, selon le théorème de Liouville,

$$\rho = \text{const.}$$

et

$$E = 0$$

Le champ est donc produit par les électrons et non par la charge seule.

Pour avoir le champ de Coulomb dans l'axe x observable, il suffit que $\rho(z)$ ait la forme

$$\rho(z) = A_0 + \frac{A_{-1}}{z - z_0} \quad (6)$$

pour un électron au point z_0 et

$$\rho(z) = kA_0 + A_{-1} \sum_{l=0}^{k-1} \frac{1}{z - z_l} \quad (7)$$

pour k électrons aux points $z_0, z_1, \ldots, z_{k-1}$.

En effet, (6) donne, pour la valeur du champ au point z_r régulier,

$$E = -\oint \frac{A_0}{(z-z_r)^2}\,dz - \oint \frac{A_{-1}}{(z-z_0)(z-z_r)^2}\,dz = -\oint \frac{A_{-1}}{(z-z_0)(z-z_r)^2}\,dz$$

cette expression se réduit à l'intégration autour des voisinages de z_0 et z_r. La première donne

$$-A_{-1}\oint_{z_0} \frac{dz}{(z-z_0)(z-z_r)^2} = -A_{-1}\oint_{z_0} \frac{\frac{1}{(z-z_r)^2}\,dz}{z-z_0} = -2\pi i \frac{A_{-1}}{(z_0-z_r)^2}$$

et la deuxième

$$-A_{-1}\oint_{z_r} \frac{dz}{(z-z_0)(z-z_r)^2}$$

$$= -A_{-1}\oint_{z_r} \frac{\frac{1}{z-z_0}\,dz}{(z-z_r)^2} = -2\pi i A_{-1}\left[\frac{1}{z-z_0}\right]'_{z=z_r}$$

$$= 2\pi i \frac{A_{-1}}{(z_0-z_r)^2} = -A_{-1}\frac{1}{z_r-z_0}\oint_{z_r}\frac{dz}{(z-z_r)^2} = 0$$

et, donc,

$$E = -\frac{2\pi i A_{-1}}{(z_0-z_r)^2} = \frac{Q}{(z_0-z_r)^2}.$$

Le champ n'agit donc pas sur le vide. Par conséquent, il faut chercher le champ qui agit sur un autre électron. Si z_1 représente un électron, (7) donne

$$\rho(z) = 2A_0 + \frac{A_{-1}}{z-z_0} + \frac{A_{-1}}{z-z_1},$$

$$E(z_1) = -\Phi \frac{2A_0\,dz}{(z-z_1)^2} - A_{-1} \times \left\{ \oint \frac{dz}{(z-z_0)(z-z_1)^2} + \oint \frac{dz}{(z-z_1)(z-z_1)^2} \right\} = -\frac{A_{-1}2\pi i}{(z_0-z_1)^2}.$$

La première intégrale est nulle, la deuxième a le point singulier z_0 et la troisième a le point singulier z_1. Donc, en intégrant dans les voisinages respectifs, on a

$$E = -2\pi i A_{-1}\left\{\frac{1}{(z_1-z_0)^2} + \frac{1}{(z_1-z_0)^2}\right\}.$$

Ce qui correspond au champ

$$E = -\frac{2\pi i A_{-1}}{(z_1-z_0)^2} = -\frac{Q}{(z_1-z_0)^2}$$

pour chaque électron.

Dans l'axe observable x, on a

$$E = -\frac{Q}{(x_1-x_0)^2} = -\frac{Q}{r^2} \tag{8}$$

selon la loi de Coulomb.

Les mêmes résultats s'obtiennent pour le potentiel

$$V = \oint \frac{\rho(z)}{z-z_0}\,dz.$$

Ces résultats sont très importants : ils prouvent que les conventions que nous avons faites sont exactes, au moins du point de vue formel.

Comme ρ a la forme (6), on déduit que *dans l'électrodynamique qui a comme loi fondamentale la loi* (8), *les électrons ont une densité superficielle de charge.*

3. **Énergie propre de l'électron.** — Supposons l'électron à l'origine des coordonnées, l'énergie totale du champ créé par cet électron est

$$W = \Sigma \frac{q_i q_n}{r_{ik}}.$$

En divisant l'espace en éléments de volume, de charges q_i, q_k, on déduit de (3) et (4) que q_i est nul, sauf dans un domaine qui contient l'électron et, donc, on peut écrire

$$W = \oint \frac{Q\rho(z)}{z}\,dz. \tag{9}$$

D'autre part, les charges formées par les domaines de z' sont nulles aussi. Mais pour $z \to 0$, (9) a la valeur suivante :

$$W = \oint_0 \frac{Q\left(A_0 + \frac{A_{-1}}{z}\right)}{z}\,dz = 2\pi i Q A_0.$$

c'est-à-dire *une énergie propre finie.*

Les coefficients A_0, A_{-l} sont donnés au moyen des constantes physiques, posons [4]

$-e$ = charge de l'électron = $4,803.10^{-10}$ u. e. s. C. G. S.,
m = masse de l'électron = $9,107.10^{-28}$ g,
c = vitesse de la lumire = $2,998.10^{10}$ cm/s,

$$W = mc^2$$

et nous aurons

$$A_0 = \frac{i}{2\pi}\frac{mc^2}{e}, \qquad A_{-1} = \frac{i}{2\pi}e$$

et la fonction ρ a la forme

$$\rho(z) = \frac{i}{2\pi}\left(\frac{mc^2}{e} + \frac{e}{z}\right). \tag{10}$$

4. **Rayon de l'électron.** — Bien que l'électron soit ponctuel dans notre théorie, on peut l'envisager par rapport au schéma classique.

La représentation conforme (10) change les cercles C, de rayon R, avec les cercles C′ de la figure 1 *a*.

On a les relations suivantes :

$$|R'A'| = \frac{1}{2\pi}\left(\frac{mc^2}{e}+\frac{e}{r}\right), \qquad R'C' = \frac{1}{2\pi}\left(\frac{e}{r}-\frac{mc^2}{e}\right),$$

$$|H'R'| = \frac{1}{2\pi}\,\frac{mc^2}{e}, \qquad r' = \frac{1}{2\pi}\,\frac{e}{r}.$$

Pour $r = -r_0$, on a (*fig.* 1 *b*)

$$|H'R'| = r',$$

d'où

$$|r_0| = \frac{e^2}{mc^2} = 2,82.10^{-13}\text{ cm}.$$

En dehors de ce rayon r_0, il n'existe plus de densités réelles, donc observables, ce qui équivaut, au point de vue de l'électrodynamique classique, à la région occupée par l'électron. r_0 est donc le rayon classique de l'électron.

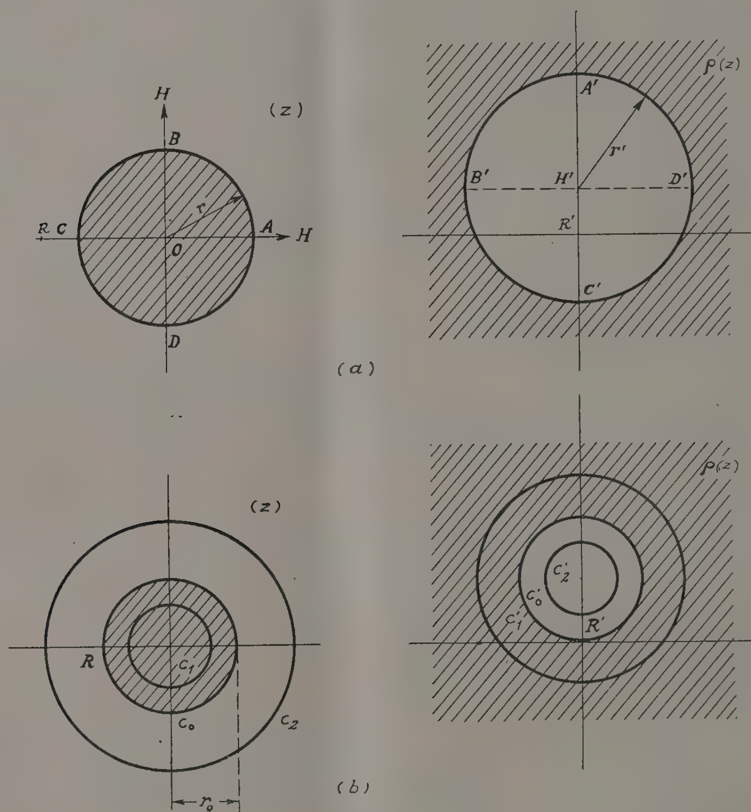


Fig. 1.

5. **Spin de l'électron.** — La densité électrique ρ est répandue d'une façon dissymétrique dans l'électron. La figure 2 montre la répartition de densité sur la surface classique de l'électron

Supposons donc que l'on a un espace complexe z (*fig.* 2), l'espace réel ne peut rien donner pour fixer la direction des y' positifs, ce qui ne serait pas une difficulté pour une répartition symétrique de charges; par contre, il est nécessaire de connaître cette direction pour se représenter l'électron dans notre théorie.

Pour tourner la difficulté, il suffit de supposer qu'il existe deux états e_1 et e_2 de l'électron. Ces deux états sont indiscernables au point de vue du champ électrique. Mais le mouvement de l'électron suffit pour donner un sens à l'axe réel et donc pour fixer le sens des y' positifs. Pourtant, ces deux états de l'électron sont discernables au moyen de champs qui aient une action sur l'électron en mouvement, c'est-à-dire au moyen du champ magnétique.

Ces deux états, nous les identifions donc avec les deux états de l'électron à deux spins différents.

6. **L'électron positif.** — On a obtenu deux états de l'électron en changeant z' en $z'_1 = \bar{z}' = x' - iy'$;

si maintenant nous posons $z'_2 = -x' - iy'$, c'est-à-dire, si nous changeons le sens des deux axes, nous obtiendrons une nouvelle distribution de charges. Cette distribution est discernable de la distribution initiale non seulement au moyen des champs magnétiques, mais aussi au moyen des champs électriques, parce que l'on a changé aussi le sens de l'axe réel. On a

$$z' = \frac{i}{2\pi}\left(\frac{mc^2}{e} + \frac{e}{z}\right) = A + iB,$$

$$z'_2 = -A - iB = -(A + iB) = -\frac{i}{2\pi}\left(\frac{mc^2}{e} + \frac{e}{z}\right).$$

On obtient donc deux distributions de charges :

$$\rho^-(z) = \frac{i}{2\pi}\left(\frac{mc^2}{e} + \frac{e}{z}\right),$$

$$\rho^+(z) = -\frac{i}{2\pi}\left(\frac{mc^2}{e} + \frac{e}{z}\right).$$

On obtient ρ^+ en posant $+e$ au lieu de $-e$ dans ρ^-; ces deux états ne diffèrent donc que du signe de la charge, notre schéma donne aussi l'électron positif.

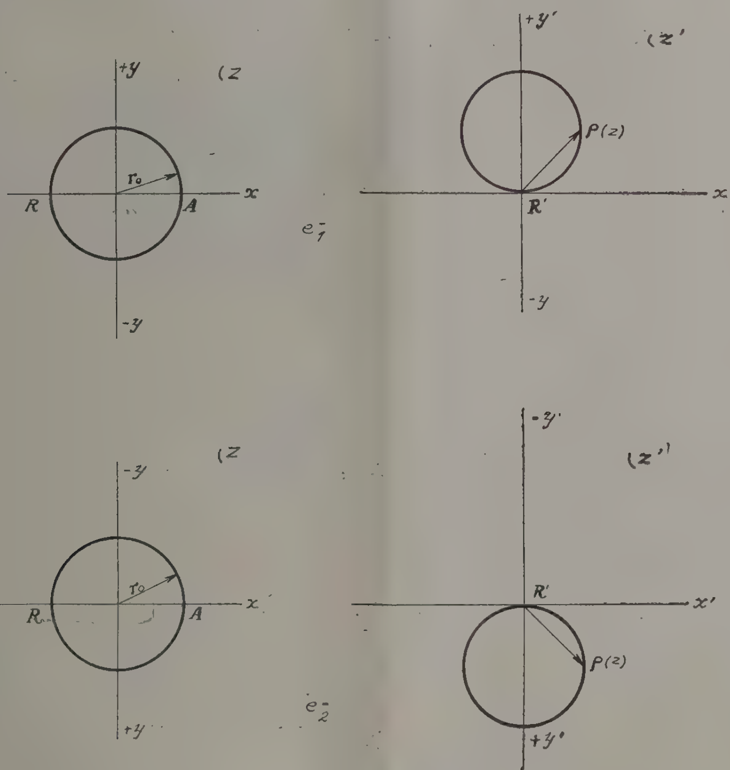


Fig. 2.

Dans notre théorie, il existe une difficulté quand nous nous plaçons au point de vue classique : en effet, aux rayons vecteurs observables correspondent des charges non observables. On voit immédiatement que cette difficulté est levée facilement au moyen d'un principe d'indéterminisme, principe qui jouera seulement quand nous voulons nous efforcer d'obtenir une image classique de l'électron.

Pour avoir ce principe d'indéterminisme au moyen d'une relation d'incertitude, nous allons faire la convention suivante : les magnitudes observables F_{ob} correspondent à des magnitudes complexes F telles que

$$F_{ob} = \frac{1}{2}(F + F^*) = |F| \cos\varphi \qquad (11)$$

mais si nous voulons que les magnitudes $F_i = iy$ soient non observables (et non $F_{i,ob} = 0$) et de même donner un sens aux différents vecteurs qui ont la même projection sur l'axe x, nous admettons que la magnitude F_{ob} (11) est douée d'une erreur égale à $k \operatorname{tg} \varphi = k \frac{y}{x}$ (k, c'est une constante qui a les dimensions de F_{ob}).

Un principe d'incertitude exige que les variables conjuguées aient les erreurs de telle façon que se correspondent les $(0, \infty)$ et $(\infty, 0)$; mais si nous voulons attacher un rayon bien déterminé à l'électron, on doit avoir un rayon $z = -r_0$ (sans erreur) tel qu'il annule la charge ρ ($\rho = 0$, $\Delta\rho = 0$) et donc ce principe doit avoir une singularité pour $\rho = 0$

et $r = -r_0$. Cette singularité est donnée par notre formule (10).

Mettons (10) sous la forme

$$\rho = \frac{e}{2\pi}\frac{\sin\varphi}{r} + i\frac{e}{2\pi}\left(\frac{\cos\varphi}{r} + \frac{1}{r_0}\right),$$

d'où l'on déduit que les charges réelles s'obtiennent par les points du plan z tels que

$$|z| = r = -r_0\cos\varphi,$$

c'est-à-dire par les points du cercle

$$\left(\frac{r_0}{2} + x\right)^2 + y^2 = \frac{r_0^2}{4} \qquad (12)$$

c'est donc dans les points de ce cercle [sauf pour $(-r_0, 0)$] que l'on doit avoir

$$\text{erreur de } z = \infty.$$

Posons $\Delta r = k_r \frac{y}{x}\tau$; la fonction la plus simple τ, qui donne $\Delta r = \infty$ dans le cercle (12), est

$$\tau = \frac{1}{\frac{r^2}{r_0 x} + 1}$$

donc

$$\Delta r\,\Delta\rho = k_r \frac{y}{x}\frac{1}{\frac{r^2}{r_0 x} + 1} k_\rho \frac{\frac{\cos\varphi}{r} + \frac{1}{r_0}}{\frac{\sin\varphi}{r}}$$

$$= k_r k_\rho \frac{y}{x}\frac{1}{\frac{r^2}{r_0 x} + 1}\frac{\frac{x}{r^2} + \frac{1}{r_0}}{\frac{y}{r^2}} = k_r k_\rho.$$

En posant $k_r k_\rho = k$, nous avons la relation d'incertitude entre la coordonnée r et la charge ρ, dans la distribution de charges due à l'électron

$$\Delta r\,\Delta\rho \geq k.$$

Nous tenons à exprimer, ici, nos vifs remerciements à M. le Professeur L. de Broglie pour l'intérêt qu'il a apporté à ce travail, et les conseils dont il nous a fait bénéficier.

Nos remerciements vont aussi à M. le Dr C. Sanchez del Rio pour l'aide que ses discussions nous ont apportée.

Manuscrit reçu le 18 février 1952.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Born M. — *Proc. Roy. Soc.*, 1934, **144**, 425-431; Actualités scientifiques n° **341**, p. 15-21 (Paris, Hermann, 1934).

[2] Broglie L. de. — Une nouvelle théorie de la lumière (Paris, Hermann, 1940-1942).

[3] Proca A. — *J. Physique Rad.*, 1939, **10**, 210.

[4] Birge R. T. — *Rev. Mod. Physics*, 1941, **13**, 233.

VARIATION DE L'ANISOTROPIE OPTIQUE MOLÉCULAIRE AVEC L'ÉTAT PHYSIQUE (GAZ, LIQUIDES ET SOLUTIONS, CRISTAUX)

Par MM. A. ROUSSET et R. LOCHET (1).

Laboratoire de Physique générale. Faculté des Sciences. Bordeaux.

Sommaire. — Les mesures de l'anisotropie optique à partir de l'intensité et de la polarisation de la lumière diffusée par les solutions de molécules anisotropes dans un solvant isotrope, traduisent les différentes formes d'associations ou d'orientations moléculaires que l'on peut prévoir dans les solutions concentrées et les liquides purs. La théorie du champ intermoléculaire de Raman et Krishnan, qui se proposait de calculer la variation de l'anisotropie quand on passe du gaz au liquide pur, explique seulement la diminution de l'anisotropie quand on passe du gaz à la solution étendue. La diminution considérable de l'anisotropie des ions NO_3^- et CO_3^{--} quand on passe de la solution au cristal s'explique par la forte anisotropie du champ intermoléculaire lorsque ces ions plans sont parallèles.

Nous appelons « anisotropie moléculaire » la quantité toujours positive

$$\delta^2 = \frac{\Sigma(A-B)^2}{2(\Sigma A)^2}.$$

où A, B et C sont les réfractivités principales de la molécule (Langevin) [1]. Si du point de vue optique la molécule admet un axe de révolution, on peut poser

$$A = g, \qquad B = C = g'$$

et

$$\delta^2 = \left[\frac{g-g'}{g+2g'}\right]^2.$$

1. Relation entre l'anisotropie et le facteur de dépolarisation dans le cas des fluides purs. — Dans un gaz, l'intensité de la diffusion polarisée due aux fluctuations de densité (diffusion isotrope) et celle de la diffusion dépolarisée due aux fluctuations d'orientation (diffusion anisotrope) sont proportionnelles au nombre de molécules par centimètre cube. Aussi, on peut déduire l'anisotropie moléculaire δ_0^2 à l'état gazeux de la seule mesure du facteur de dépolarisation

$$\delta_0^2 = \frac{5\rho}{6-7\rho}.$$

Quand on passe du gaz au liquide, la diffusion isotrope ne reste pas proportionnelle au nombre de molécules par centimètre cube, mais on vérifie qu'elle est proportionnelle au coefficient de compressibilité isotherme β comme le prévoit la théorie d'Einstein-Smoluchowski.

Si l'on suppose encore les molécules orientées au hasard, on peut déduire l'anisotropie moléculaire δ^2 à l'état liquide de la mesure du facteur de dépolarisation ρ et du coefficient de compressibilité isotherme β. On trouve

$$\delta^2 = \frac{5\gamma\rho}{6-7\rho}, \qquad \text{avec} \quad \gamma = kT\beta n \tag{1}$$

(n, nombre de molécules par centimètre cube; k, constante de Boltzmann; T, température absolue).

Si l'on ignore la valeur de β, il faut mesurer la constante de Lord Rayleigh. L'élimination de la compressibilité entre la formule (1) et la constante de Lord Rayleigh en lumière naturelle N,

$$N = \frac{\pi^2(\mu^2-1)^2}{2n\lambda^4}\left(\gamma + \frac{13\,\delta^2}{5}\right)$$

conduit à

$$\delta^2 = \frac{5\lambda^4 n}{6\pi^2(\mu^2-1)^2}\,\frac{2\rho}{1+\rho}N. \tag{2}$$

2. Variation de l'anisotropie quand on passe du gaz au liquide : effet du champ intermoléculaire (théorie de Raman et Krishnan). — L'expérience a montré que les valeurs de δ^2 et δ_0^2 étaient, en général, assez différentes, l'anisotropie moléculaire δ^2 relative au liquide étant en général la plus faible. Raman et Krishnan ont attribué cette diminution a un effet du champ moléculaire, c'est-à-dire à l'action des moments induits dans les molécules voisines de la molécule considérée. On peut essayer avec Raman et Krishnan [2] de calculer la variation de δ^2 due au champ moléculaire.

Dans les théories de la diffusion de la lumière, on englobe le champ moléculaire dans le champ de polarisation produit par toutes les autres molécules du fluide : on trace autour de la molécule une cavité sphérique (sphère de Lorentz) et l'on remplace l'effet des moments induits dans toutes les molé-

(1) Communication faite à la Société française de Physique (section du Sud-Ouest) le 20 décembre 1951.

cules extérieures à la sphère de Lorentz par celui des charges qui apparaissent à l'intérieur de la cavité supposée vide. On trouve pour le champ de polarisation $\frac{4\pi}{3}\mathbf{P}$, où $\mathbf{P}$ est la polarisation.

Mais $\mathbf{P}$ est lié au champ extérieur $\mathbf{Z}$ et à la constante diélectrique $\varepsilon = \mu^2$ par la relation

$$\varepsilon \mathbf{Z} = \mathbf{Z} + 4\pi \mathbf{P},$$

donc

$$\mathbf{P} = \frac{\mu^2 - 1}{4\pi}\mathbf{Z}$$

et le champ de polarisation

$$\frac{4\pi}{3}\mathbf{P} = \frac{\mu^2 - 1}{3}\mathbf{Z};$$

c'est celui qu'on ajoute au champ extérieur pour obtenir le champ total

Ce champ de polarisation est évidemment isotrope : il ne dépend pas de l'orientation du champ extérieur par rapport à la molécule considérée, ce qui est vrai pour des molécules suffisamment éloignées que l'on peut supposer distribuées sphériquement, mais devient incorrect pour les molécules au voisinage d'une molécule de forme anisotrope. En assimilant la forme de la molécule à un ellipsoïde dont les axes x, y, z coïncident avec celui des réfractivités et en *supposant isotrope la polarisation du milieu environnant*, Raman et Krishnan ont montré qu'il fallait introduire dans les rapports des réfractivités réelles (A', B', C') de la molécule dans le liquide aux réfractivités (A, B, C) de la molécule à l'état gazeux (où le champ de polarisation est nul) des termes correctifs σ_1, σ_2, σ_3 ne dépendant que de l'excentricité de l'ellipsoïde moléculaire

$$\left.\begin{aligned} A' &= A\left(1 + \frac{3}{4}\pi\frac{\mu^2 - 1}{\mu^2 + 2}\sigma_1\right), \\ B' &= B\left(1 + \frac{3}{4}\pi\frac{\mu^2 - 1}{\mu^2 + 2}\sigma_2\right), \\ C' &= C\left(1 + \frac{3}{4}\pi\frac{\mu^2 - 1}{\mu^2 + 2}\sigma_3\right). \end{aligned}\right\} \qquad (3)$$

Les formules qui donnent l'intensité de la diffusion anisotrope restent valables à la condition d'introduire l'anisotropie

$$\delta^2 = \frac{(A' - B')^2}{2(A' + B' + C')^2}$$

dans les formules de diffusion.

Raman et Krishnan ont pu ainsi rendre compte de la variation d'anisotropie des molécules, faiblement anisotropes d'ailleurs, de quelques carbures saturés (pentane, hexane, heptane, octane) quand on passe du gaz au liquide.

3. **Cas des solutions de molécules anisotropes dans un solvant isotrope.** — Supposons que nous ayons mesuré la diffusion anisotrope de molécules, en solution dans un solvant isotrope. Si l'indice de la solution varie peu avec la concentration (il en est ainsi lorsque solvant et soluté pris à l'état de liquides purs ont des indices voisins), la théorie de Raman et Krishnan laisse prévoir une valeur de l'anisotropie des molécules diffusantes indépendante de la concentration en molécules isotropes et égale, par conséquent, à celle mesurée sur le liquide pur : l'indice μ de la solution ne variant pas et σ_1, σ_2 et σ_3 ne dépendant que de la forme de la molécule anisotrope, on voit que les réfractivités A', B', C' ne varieront pas avec la concentration en molécules anisotropes [*voir* form. (3)].

C'est cette conséquence de la théorie de Raman et de Krishman que nous avons voulu vérifier sur les solutions de benzène et de nitrobenzène dans le tétrachlorure de carbone.

En supposant le solvant isotrope, la diffusion moléculaire d'une solution comprend :

— Une partie cohérente, polarisée, due aux fluctuations de densité et de concentration;

— Une partie incohérente dépolarisée due aux fluctuations d'orientation des molécules anisotropes du soluté. En la supposant proportionnelle au nombre des molécules du soluté, nous pouvons définir une anisotropie moléculaire δ^2 des molécules en solution.

Mais, même dans le cas des solutions étendues, on ne connaît pas *a priori* l'intensité de la diffusion cohérente. Il faut donc mesurer la constante de Lord Rayleigh N, ainsi que le facteur de dépolarisation ρ pour en déduire l'intensité de la diffusion anisotrope tout comme dans le cas d'un liquide pur dont on ne connaîtrait pas le coefficient de compressibilité isotherme [form. (2)]. Mais les mesures de N et ρ étant des opérations très différentes exigeant deux montages distincts, on pourra, dans certains cas, [4] remplacer la mesure de ρ, par une nouvelle mesure d'intensité, celle en lumière incidente polarisée, soit P, puisque

$$\rho = \frac{2N - P}{P}.$$

Dans ces conditions (mesures de N et de P), l'expression de δ^2 relative au liquide pur devient

$$\delta^2 = \frac{5\lambda^4 n}{6\pi^2}\frac{2N - P}{(\mu^2 - 1)^2}. \qquad (4)$$

Dans le cas des mélanges de n_1 molécules anisotropes et de n_2 molécules isotropes par centimètre cube, $n_1 + n_2 = n$; on peut encore écrire

$$N = \frac{\pi^2}{2n\lambda^4}(\mu^2 - 1)^2\left(\Gamma + \frac{13\Delta^2}{5}\right),$$

où Γ est un terme qui provient de la diffusion cohérente (fluctuation en densité et en concentration) et la quantité Δ^2 est liée à ρ (donc à N et P)

par une relation analogue à celle relative à un liquide pur [3]

$$\rho = \frac{2N - P}{P} = \frac{6\Delta^2}{5\Gamma + 7\Delta^2} \quad \text{ou encore} \quad \Delta^2 = \frac{5\Gamma\rho}{6 - 7\rho}.$$

Mais ici Δ^2 n'est pas simplement l'anisotropie δ^2 de la molécule anisotrope. On a la relation

$$\Delta^2 = \frac{n_1 \delta^2 \alpha^2}{\frac{3}{4}\pi\left(\frac{\mu^2 - 1}{\mu^2 + 2}\right)^2} n, \tag{5}$$

où α représente la réfractivité moyenne de la molécule anisotrope que l'on sait liée à la réfraction moléculaire par

$$R_M = \frac{4\pi}{3} N_1 \alpha \qquad (N_1, \text{ nombre d'Avogadro}).$$

En éliminant Γ entre N et ρ, on trouve pour l'anisotropie moléculaire δ^2 du soluté anisotrope

$$\delta^2 = \frac{5\lambda^4 N_1 M}{6\pi^2(\mu^2 + 2)^2} \frac{2\rho}{1 + \rho} \frac{N}{c}$$

ou, en introduisant N et P,

$$\delta^2 = \frac{5\lambda^4 N_1 M}{6\pi^2(\mu^2 + 2)^2} \frac{2N - P}{c}$$

(M, masse moléculaire et c, concentration du soluté anisotrope). Nous avons vérifié que cette formule est identique à celle que M. Lochet [4] a déduite du calcul direct de la diffusion anisotrope des molécules orientées au hasard.

Ainsi, on pourra déduire δ^2 de la mesure des constantes de Lord Rayleigh N et P (ou de N et ρ) et de l'indice μ pour une solution de concentration connue c.

4. **Résultats expérimentaux.** — Les mesures de ρ de N et de P ont été faites en lumière verte sur les montages décrits par M. Lochet [4].

Pour la filtration des solutions, nous avons utilisé comme lui le charbon activé.

Les deux courbes traduisant les variations de δ^2 ont été tracées sur le même graphique (*fig.* 1) en adoptant pour abscisse, non pas la concentration du liquide anisotrope, mais sa fraction molaire.

4.1. *Solution de benzène dans le tétrachlorure de carbone* (courbe 2). — On voit que δ^2, d'abord constant et égal à $27{,}4 . 10^{-3}$ dans les solutions étendues, diminue ensuite rapidement pour se fixer à la valeur $23{,}0 . 10^{-3}$ dans le liquide pur.

4.2. *Solution de nitrobenzène dans le tétrachlorure de carbone* (courbe 1). — On voit que δ^2, d'abord constant et égal à $33{,}4 . 10^{-3}$ aux faibles concentrations, augmente avec la concentration et atteint la valeur $58{,}0 . 10^{-3}$ dans le liquide pur.

5. **Interprétation des résultats expérimentaux.** — 1° Dans la théorie du champ moléculaire de Raman et Krishnan, seule la variation de l'indice avec la concentration devrait expliquer la variation de δ^2; or, la variation de l'indice reste faible. En comparant l'anisotropie du liquide et celle du gaz, Parthasarathy [5] a déterminé les coefficients σ_1 et σ_2 relatifs au benzène et au nitrobenzène et prévu la variation des coefficients g et g' (donc de δ_2) qu'entraîne la légère augmentation relative de l'indice des solutions dans le tétrachlorure de carbone. Pour le benzène, $\delta^2 \times 10^3$ passerait de 23,0

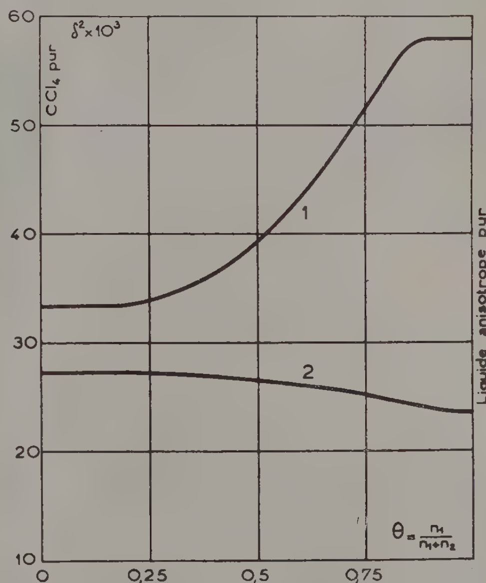


Fig. 1. — Courbe 1 : solutions de nitrobenzène dans CCl_4; Courbe 2 : solution de l'enzène dans CCl_4.

dans le benzène pur à 23,5 dans la solution correspondante à $c = 0{,}20$. Pour le nitrobenzène, la variation serait insignifiante.

2° La variation de δ^2 avec c se faisant en sens inverse pour le benzène et le nitrobenzène, il faut chercher une explication différente pour ces deux molécules anisotropes.

5.1. *Nitrobenzène.* — Le nitrobenzène possède un moment dipolaire important. Les études fort nombreuses des solutions de nitrobenzène dans un solvant non polaire (polarisation diélectrique, effet Kerr, saturation électrique, effet Cotton-Mouton) ont confirmé l'existence, dans le nitrobenzène pur et dans les solutions concentrées, de molécules doubles dues à la liaison antiparallèle des moments dipolaires. Les phénomènes de biréfringence accidentelle seront plus faciles à interpréter si les molécules du solvant sont optiquement isotropes comme CCl_4.

De toutes ces méthodes, ce sont les mesures de

biréfringence magnétique (effet Cotton-Mouton) qui sont les plus faciles à interpréter. Contrairement à ce qui se produit dans les autres effets cités, le rôle des moments polaires se réduit à associer les molécules, deux par deux par exemple. Il n'y a pas d'orientation de ces dipôles par le champ magnétique.

Piekara et Goldet [6] ont donné l'interprétation suivante de leurs mesures de biréfringence magnétique dans les solutions de nitrobenzène dans le tétrachlorure de carbone. On suppose toutes les molécules de nitrobenzène fortement couplées deux à deux (*fig.* 2). Si l'on néglige les interactions des moments induits, les polarisibilités magnétiques (c et c') et optiques (g et g'), donc les différences $(c - c')$ et $(g - g')$ seront doublées dans chaque paire (ce qui est vrai en première approximation pour les molécules fortement anisotropes). La constante de Cotton-Mouton rapportée à la molécule double et qui varie comme $(g - g') \times (c - c')$ est multipliée

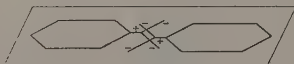


Fig. 2.

par 4, mais la constante rapportée à la molécule-gramme, c'est-à-dire ici à $\frac{N}{2}$ molécules, est simplement multipliée par 2. En réalité, quand on passe de la solution diluée, où les molécules sont supposées simples, au nitrobenzène pur, la constante moléculaire de Cotton-Mouton est multipliée par 1,75. Ce qui prouve que l'hypothèse d'une association en paires rigides de toutes les molécules du liquide pur n'est qu'approchée.

Revenons à la diffusion moléculaire. Dans l'hypothèse d'une association bimoléculaire de celle du type envisagé par Goldet et Piekara, si l'on pose avec eux que les réfractivités principales des paires de molécules sont le double de celles des molécules simples, la diffusion anisotrope, qui est proportionnelle au nombre total des molécules (simples ou doubles) et au carré de $(g - g')$ va doubler et, par conséquent, le facteur de dépolarisation ρ va augmenter.

Dans l'hypothèse où *toutes* les molécules seraient réunies par paires, dans la formule donnant δ^2, il faut remplacer M par $2M$ et la réfraction moléculaire R_m^2 par $4R_m^2$, ce qui conduirait pour les molécules doubles à une valeur de δ^2 moitié de celle que nous avons tirée de la formule non interprétée, soit

$$\frac{1}{2} \times 58.10^{-3} \simeq 29.10^{-3}$$

et cette valeur devrait être sensiblement égale à celle obtenue dans les solutions infiniment diluées. Nous trouvons dans ces solutions une valeur plus forte $33,4.10^{-3}$, mais le rapport $\frac{58}{33,4} = 1,73$ n'est pas très éloigné du rapport 1,75 des constantes de Cotton-Mouton pour le liquide pur et les solutions étendues.

Enfin, la diminution d'anisotropie moléculaire quand on passe de la vapeur où δ_0^2 atteint 54.10^{-3} à la solution étendue s'expliquerait par l'action du champ moléculaire de Raman et Krishnan : les molécules du solvant étant isotropes, on peut supposer une polarisation isotrope à l'extérieur de la cavité moléculaire. En somme, la théorie du champ moléculaire de Raman et Krishnan rendrait mieux compte de la diminution d'anisotropie quand on passe du gaz à la solution étendue que lorsqu'on passe du gaz au liquide pur.

5.2. *Benzène.* — Le benzène n'a pas de moment dipolaire : les seules forces d'attraction moléculaire sont celles dites de « dispersion » (London).

Les « dipôles résiduels » de la théorie de London provoquent dans une molécule voisine des doublets induits de même période et en concordance de phase avec les doublets inducteurs. Dans le cas des molécules optiquement isotropes, on peut supposer que le doublet de London a une symétrie sphérique et qu'il est équivalent à trois oscillateurs linéaires identiques, formant un trièdre trirectangle d'énergie $\frac{3}{2} h\nu_0$. On trouve une énergie d'interaction $-\frac{3}{4} h\nu_0 \frac{\alpha^2}{r^6}$ (α, réfractivité; r, distance des centres des molécules) qui est négative; ce qui correspond à une attraction.

La symétrie sphérique des forces de London n'est réalisée rigoureusement que dans les molécules monoatomiques. Le problème des molécules polyatomiques est très complexe. Les unités élémentaires de l'interaction dipôle-dipôle, n'ont pas en général, la symétrie sphérique des forces centrales. Ce sont plutôt des centres de forces « hautement anisotropes ». Mais, puisque les forces de dispersion sont liées aux oscillateurs mêmes qui déterminent la réfractivité, donc l'anisotropie moléculaire, on peut en première approximation placer sur les axes de réfractivité principale de la molécule des doublets de London dont les amplitudes varieront dans le même sens que les réfractivités correspondantes. Sous l'action de tels doublets résiduels, les molécules anisotropes vont tendre à s'orienter, les orientations stables étant celles dans lesquelles les axes de plus grande réfractivité sont parallèles. Ainsi les molécules de benzène, caractérisées par une bien plus grande réfractivité mesurée parallèlement au plan du noyau que perpendiculairement à ce plan, tendront dans leur voisinage immédiat à orienter leurs noyaux dans des plans parallèles.

Si, contre un noyau benzénique viennent s'appuyer

deux molécules de benzène dont les plans des noyaux sont sensiblement parallèles (*fig.* 3), on ne peut plus supposer avec Raman et Krishnan que la polarisation du liquide environnant, en dehors de la cavité elliptique, est la même, quelle que soit l'orientation du champ incident par rapport à la molécule, la polarisation des molécules immédiatement voisines variant suivant que le champ extérieur est parallèle ou perpendiculaire au plan du noyau. Dans le benzène pur, le calcul du champ moléculaire de Raman et Krishnan n'est pas correct; ces auteurs supposant isotrope la polarisation du milieu environnant; la diminution de δ^2 est plus importante qu'ils ne le prévoient. Cette anisotropie de la polarisation diminue, puis disparaît quand les molécules isotropes de CCl_4 viennent remplacer peu à peu les molécules de benzène et ceci explique l'augmentation de l'anisotropie quand la concentration en benzène diminue.

Pour la solution diluée, le champ moléculaire dû

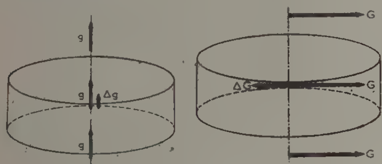


Fig. 3.

aux molécules isotropes de CCl_4 peut, au contraire, se calculer comme l'ont fait Raman et Krishnan et son action explique la diminution de la valeur de δ^2 quand on passe de la vapeur à la solution étendue (39.10^{-3} dans la vapeur et $27,4.10^{-3}$ dans la solution étendue).

6. **Solutions d'ions anisotropes.** — Cette perturbation du champ de polarisation, due à l'orientation des molécules voisines anisotropes, est plus importante encore dans le cas de certains cristaux : c'est ce que met en évidence la comparaison de l'anisotropie des ions plans NO_3^- dans le cristal de NO_3Na et des ions NO_3^- en solution.

Ion NO_3^-. — Lochet [4] a mesuré la diffusion anisotrope d'un certain nombre de solutions aqueuses renfermant des ions NO_3^- [NO_3H, NO_3Na, NO_3NH_4, $(NO_3)^2Ca$ et $(NO_3)^2Cd$]. Pour des concentrations inférieures à 0,30, il a trouvé que l'anisotropie δ^2 de l'ion NO_3^- était sensiblement constante et il a tiré pour δ^2 la valeur moyenne 74.10^{-3}. *Cette anisotropie est bien plus forte que celle que l'on peut attribuer aux ions* NO_3^- *d'un cristal.* A partir des indices ordinaire et extraordinaire de ce cristal, on peut calculer deux réfractions moléculaires différentes pour la pseudo-molécule NO_3Na

$$R_{\parallel} = 12,58; \quad R_{\perp} = 7,75$$

se rapportant respectivement à une vibration lumineuse parallèle et perpendiculaire au plan de l'ion NO_3^-. En retranchant la réfraction ionique de Na^+, soit 0,74, on calcule les réfractions ioniques principales de l'ion

$$R_{\parallel} = 11,84 \quad \text{et} \quad R_{\perp} = 7,01$$

et enfin

$$\delta^2 = 24.10^{-3}.$$

Dans le cristal de NO_3 Na, où les ions plans NO_3^- sont tous perpendiculaires à l'axe optique, donc parallèles entre eux et où la réfractivité dans le plan de l'ion est plus importante que perpendiculaire à ce plan, par analogie avec ce que nous avons trouvé pour le benzène, on doit prévoir une diminution très importante de l'anisotropie quand on passe de la solution au cristal, où les plans des ions NO_3^- sont ici rigoureusement et à chaque instant parallèles.

A partir de l'anisotropie $\delta^2 = 74.10^{-3}$ et de la réfraction ionique de l'ion NO_3^- en solution $R_i = 10,6$, on peut calculer les réfractions ioniques $R_{\parallel}$ et $R_{\perp}$; on trouve

$$R_{\parallel} = 13,5 \quad \text{et} \quad R_{\perp} = 4,07$$

différentes de celles du cristal.

Ion CO_3^{--}. — L'étude des solutions de carbonates alcalins a conduit à attribuer à l'ion plan CO_3^{--} une anisotropie

$$\delta^2 = 70.10^{-3};$$

à partir des indices de la calcite de structure cristalline analogue à celle de NO_3Na, Bragg [7] a calculé

$$R_{\parallel} = 11,32 \quad \text{et} \quad R_{\perp} = 8,38,$$

ce qui conduit à une anisotropie de l'ion dans le cristal égale à 9.10^{-3}, bien inférieure à celle de l'ion en solution.

Ions ClO_3^-, BrO_3^-, IO_3^-. — Ces ions ont une structure pyramidale régulière, l'atome d'halogène étant hors du plan des oxygènes, ce qui conduit à une anisotropie inférieure à celle d'une structure plane. L'influence de l'atome d'halogène augmentant avec sa réfractivité, on doit prévoir que pour des distances atomiques analogues, l'anisotropie diminuerait du chlore à l'iode. Les valeurs trouvées pour δ^2 confirment ces prévisions.

Manuscrit reçu le 21 janvier 1952.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] CABANNES J. — La diffusion moléculaire de la lumière, Presses Universitaires, Paris, 1929.

[2] RAMAN et KRISHNAN. — *Phil. Mag.*, 1928, **5**, 498; *Proc. Roy. Soc.*, London A, 1928, **117**, 589.

[3] LELONG Mlle. — *Diplôme d'Études supérieures*, Paris, 1943.

[4] LOCHET R. — *Thèses*, Bordeaux, 1951; *J. Physique Rad.*, 1952, **13**, p. 89-91.

[5] PARTHASARATHY S. — *Indian J. Physics*, 1932, **8**, 275.

[6] PIEKARA A. — *Acta Phys. Polonica*, 1950, **10**, 37.

[7] BRAGG W. H. et BRAGG W. L. — The cristalline State, vol. **1**, A general Survey, London, 1933, p. 123.

DÉTERMINATION GRAPHIQUE DES COEFFICIENTS DE FRESNEL EN INCIDENCE OBLIQUE A LA SURFACE DE SÉPARATION D'UN MILIEU TRANSPARENT ET D'UN MILIEU ABSORBANT

Par PAUL BOUSQUET.
Laboratoire de Physique générale de la Faculté des Sciences de Marseille.

Sommaire. — On indique une méthode graphique qui permet de déterminer de façon simple le facteur de réflexion et le changement de phase à la réflexion, *en incidence oblique*, à la surface de séparation d'un milieu transparent et d'un milieu absorbant.

La méthode a été appliquée à la surface de séparation argent-air et les résultats obtenus comparés à ceux indiqués par Scandone et Ballerini pour les mêmes valeurs des constantes optiques de l'argent.

A l'aide des coefficients de Fresnel ainsi obtenus, on a également déterminé pour diverses incidences le facteur de réflexion d'une lame très mince d'argent, d'épaisseur 0,01 λ, placée dans l'air, à l'aide de la méthode graphique décrite par P. Cotton et l'on a aussi comparé ces résultats à ceux de Scandone et Ballerini.

On montre ainsi que la méthode indiquée permet toujours d'obtenir une précision suffisante dans la pratique. Cette précision atteint 1/1000 en valeur relative pour les coefficients de Fresnel et quelques millièmes pour le facteur de réflexion d'une lame mince.

Une détermination graphique des coefficients de réflexion de Fresnel à la surface de séparation de deux milieux, l'un transparent et l'autre absorbant, a été indiquée par Malé [1] dans le cas de l'incidence normale.

Si n_0 désigne l'indice réel du premier milieu et $n_1 = \nu_1 - j\varkappa_1$ l'indice complexe du deuxième milieu, le rapport de l'amplitude complexe réfléchie à l'amplitude incidente s'écrit dans ce cas

$$r = \frac{n_0 - n_1}{n_0 + n_1} = \frac{1 - \frac{n_1}{n_0}}{1 + \frac{n_1}{n_0}} = \rho\, e^{j\alpha}.$$

Malé a montré que, dans le plan de la variable complexe, les courbes correspondant à des valeurs constantes de ρ et de α forment respectivement deux familles de cercles orthogonaux et que, par suite, on peut ainsi constituer une abaque sur laquelle il suffit de porter le point de coordonnées $\frac{\nu_1}{n_0}$ et $\frac{\varkappa_1}{n_0}$ pour lire immédiatement les valeurs du module ρ et de l'argument α du coefficient de Fresnel.

Lorsque l'incidence est oblique, les formules donnant r sont de forme plus compliquée; une méthode graphique s'avère donc encore plus utile.

Dans ce cas, au moyen de la théorie électromagnétique de la lumière, on obtient facilement pour les coefficients de Fresnel les expressions suivantes, où $r_\perp$ et $r_\parallel$ concernent respectivement la composante perpendiculaire et la composante parallèle au plan d'incidence, et θ_0 l'angle d'incidence, dans le premier milieu d'indice n_0.

$$r_\perp = \frac{n_0 \cos\theta_0 - \sqrt{n_1^2 - n_0^2 \sin^2\theta_0}}{n_0 \cos\theta_0 + \sqrt{n_1^2 - n_0^2 \sin^2\theta_0}},$$

$$\frac{r_\parallel}{r_\perp} = -\frac{n_0 \sin^2\theta_0 - \cos\theta_0 \sqrt{n_1^2 - n_0^2 \sin^2\theta_0}}{n_0 \sin^2\theta_0 + \cos\theta_0 \sqrt{n_1^2 - n_0^2 \sin^2\theta_0}},$$

ce qui peut s'écrire

$$r_\perp = \frac{1 - \frac{1}{n_0 \cos\theta_0} \sqrt{n_1^2 - n_0^2 \sin^2\theta_0}}{1 + \frac{1}{n_0 \cos\theta_0} \sqrt{n_1^2 - n_0^2 \sin^2\theta_0}},$$

$$\frac{r_\parallel}{r_\perp} = -\frac{1 - \frac{\cos\theta_0}{n_0 \sin^2\theta_0} \sqrt{n_1^2 - n_0^2 \sin^2\theta_0}}{1 + \frac{\cos\theta_0}{n_0 \sin^2\theta_0} \sqrt{n_1^2 - n_0^2 \sin^2\theta_0}}.$$

Il s'agit donc de déterminer le nombre complexe

$$\frac{1}{n_0} \sqrt{n_1^2 - n_0^2 \sin^2\theta_0}.$$

On le multipliera ensuite par le nombre réel $\frac{1}{\cos\theta_0}$ ou par le nombre réel $\frac{\cos\theta_0}{\sin^2\theta_0}$ et l'on sera ramené au cas de l'incidence normale pour le calcul des deux quantités $r_\perp$ et $\frac{r_\parallel}{r_\perp}$ donc de $r_\parallel$ et $r_\perp$. Posons

$$\frac{1}{n_0} \sqrt{n_1^2 - n_0^2 \sin^2\theta_0} = \frac{1}{n_0} \sqrt{\nu_1^2 - \varkappa_1^2 - n_0^2 \sin^2\theta_0 - 2j\varkappa_1\nu_1} = p - jq.$$

En élevant au carré, il vient

$$\frac{\varkappa_1 \nu_1}{n_0^2} = pq, \qquad \sin^2\theta_0 - \frac{\nu_1^2 - \varkappa_1^2}{n_0^2} = q^2 - p^2.$$

La première équation montre que, dans le plan (p, q), les courbes correspondant à une valeur constante de $\frac{\varkappa_1 \nu_1}{n_0^2}$ forment une famille d'hyperboles équilatères qui admettent les axes de coordonnées comme asymptotes.

La deuxième montre que les courbes qui correspondent à une valeur constante de $\sin^2\theta_0 - \frac{\nu_1^2 - \varkappa_1^2}{n_0^2}$ forment une deuxième famille d'hyperboles équilatères orthogonales aux précédentes.

Les points d'intersection de ces hyperboles fournissent immédiatement, par simple lecture sur les

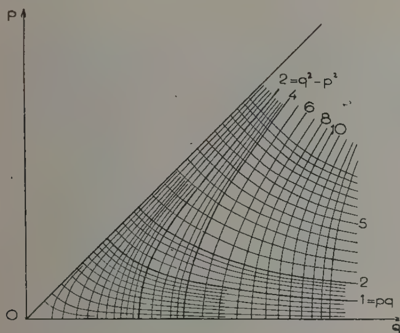


Fig. 1.

axes, les valeurs de p et q correspondant aux valeurs de n_0, n_1 et θ_0 choisies.

Par raison de symétrie, il est naturellement suffisant de tracer le réseau de courbes dans un demi-quadrant; nous l'avons fait dans la partie du plan comprise entre l'axe Oq et la première bissectrice, ce qui correspond au cas où l'on a $q > p$. Il suffit d'intervertir p et q dans le cas contraire.

Il faut remarquer que la détermination de p et q est particulièrement simple si l'on cherche à calculer les coefficients de Fresnel correspondant à diverses incidences pour deux milieux d'indices n_0 et n_1 donnés. Il suffit dans ce cas, pour déterminer p et q pour chacune des incidences θ_0 considérées, de prendre la valeur de $\sin^2\theta_0$, d'en retrancher la quantité constante $\frac{\nu_1^2 - \varkappa_1^2}{n_0^2}$ et de prendre les points d'intersection des hyperboles correspondantes de la 2e famille avec l'hyperbole de la 1re famille relative à $\frac{\varkappa_1 \nu_1}{n_0^2}$.

Si l'indice n_1 est réel, c'est-à-dire si le 2e milieu est transparent, le produit $pq = \frac{\varkappa_1 \nu_1}{n_0^2}$ est nul et l'hyperbole correspondante est dégénérée et remplacée par l'ensemble des deux axes de coordonnées. Les nombres p et q sont alors déterminés par les points d'intersection des hyperboles $p^2 - q^2 =$ const. avec les axes.

L'axe Oq correspond à $p = 0$, c'est-à-dire au cas où l'on a

$$q^2 = \sin^2\theta_0 - \frac{\nu_1^2}{n_0^2} > 0 \quad \text{(réflexion totale).}$$

L'axe Op correspond à

$$\sin^2\theta_0 - \frac{\nu_1^2}{n_0^2} = -p^2 < 0,$$

c'est-à-dire à un angle d'incidence inférieur à l'angle limite.

L'origine des coordonnées, enfin, est le point relatif au cas de l'incidence limite.

Dans tous les cas, les nombres p et q étant ainsi déterminés graphiquement, on forme les quantités :

$$p' = \frac{p}{\cos\theta_0}, \qquad p'' = p\,\frac{\cos\theta_0}{\sin^2\theta_0};$$

$$q' = \frac{q}{\cos\theta_0}, \qquad q'' = q\,\frac{\cos\theta_0}{\sin^2\theta_0},$$

et l'on est ramené au même calcul qu'en incidence normale, les nombres p' et q' dans le cas de la composante perpendiculaire, p'' et q'' dans le cas de la composante parallèle remplaçant respectivement $\frac{\nu_1}{n_0}$ et $\frac{\varkappa_1}{n_0}$. On peut ensuite, soit faire le calcul, soit plus simplement lire le résultat sur les abaques de Malé.

Application au cas de l'argent dans l'air. Comparaison de nos résultats à ceux obtenus par d'autres auteurs. — Pour vérifier notre méthode et avoir un ordre de grandeur de la précision que l'on peut en attendre, nous l'avons appliquée en prenant les valeurs suivantes des indices :

$$n_0 = 1, \qquad \nu_1 = 0,17, \qquad \varkappa_1 = 3,34$$

qui sont celles adoptées par F. Scandone et L. Ballerini [2] pour l'étude dans l'air des lames d'argent obtenues par projection cathodique ($\lambda = 5893$ Å).

1° *Facteur de réflexion.* — Pour la composante perpendiculaire au plan d'incidence, nos résultats sont en accord excellent avec ceux de ces auteurs ainsi qu'en témoigne le tableau suivant dans lequel la première ligne concerne nos résultats et la seconde ceux de Scandone et Ballerini pour le facteur de réflexion air-argent, $|r_\perp|^2 = R_\perp$

θ_0.....	0°.	10°.	20°.	30°.	40°.	45°.
B.......	0,946	0,946	0,949	0,953	0,959	0,962
S et B...	0,9457	–	–	0,9533	–	0,9621
θ_0.....	50°.	60°.	70°.	75°.	80°.	85°.
B.......	0,965	0,973	0,982	0,986	0,991	0,995
S et B...	–	0,9733	–	0,9862	–	0,9953

Scandone et Ballerini ne donnent pas les résultats pour $\theta_0 = 10°, 20°, 40°, 50°, 70°$ et $80°$.

On voit que les différences sont toujours inférieures au 1/1000. L'accord est donc très satisfaisant.

Il n'en est plus de même dans le cas de la composante parallèle pour laquelle nous avons trouvé des divergences qui, sans être bien grandes, atteignent cependant 1/100. Après avoir cru à une erreur de notre part et refait soigneusement nos déterminations, nous avons dû admettre que des inexactitudes s'étaient probablement glissées dans les résultats donnés par Scandone et Ballerini. Cette affirmation est basée sur les raisons suivantes :

a. Pour $\theta_0 = 45°$, il est facile de montrer que l'on a la relation $r_{\parallel} = - r_{\perp}^2$.

En partant donc de la valeur de $R_{\perp}$ pour laquelle nous sommes entièrement d'accord avec Scandone et Ballerini, ainsi que nous venons de voir, nous trouvons pour $R_{\parallel} = R_{\perp}^2$, la valeur 0,925, égale à la valeur déterminée graphiquement, alors que Scandone et Ballerini indiquent $R_{\parallel} = 0{,}919$.

b. Pour d'autres valeurs de θ_0, nous avons fait le calcul complet de $|r_{\parallel}|^2$ à l'aide de la formule donnée par Abelès [3] et les résultats ont toujours concordé à moins de 1/1000 près avec ceux indiqués ci-dessous et que nous avons déterminés graphiquement :

θ_0....	0°.	10°.	20°.	30°.	40°.	45°.
$R_{\parallel}$.....	0,946	0,944	0,942	0,937	0,930	0,925

θ_0....	50°.	60°.	70°.	75°.	85°.	90°.
$R_{\parallel}$.....	0,919	0,907	0,896	0,896	0,945	1

2° *Changements de phase.* — Pour la composante perpendiculaire, nous avons également déterminé le changement de phase à la réflexion. φ désignant l'avance de phase, exprimée en grades, nous avons trouvé les résultats suivants :

θ_0..........	0°.	10°.	20°.	30°.	40°.
φ..............	163,1	163,6	165,3	168,1	171,8

θ_0..........	50°.	60°.	70°.	80°.	90°.
φ..............	176,4	181,7	187,5	193,7	200

3° *Facteur de réflexion d'une lame d'argent dans l'air.* — Enfin, nous avons également déterminé, par voie graphique, pour la même composante perpendiculaire, le facteur de réflexion d'une lame d'argent d'épaisseur $d_1 = 0{,}01\ \lambda$, dans l'air, pour diverses incidences.

Nous avons employé dans ce but la méthode graphique indiquée par P. Cotton [4]. Dans le cas général d'une lame d'indice n_1 séparant deux milieux d'indice n_0 et n_2, le rapport de l'amplitude réfléchie par la lame dans le milieu n_0 à l'amplitude incidente s'écrit sous forme complexe.

$$\frac{b_0}{a_0} = r_1 \frac{-\dfrac{r_2}{r_1} - e^{2jm}}{-r_1 r_2 - e^{2jm}},$$

r_1 et r_2 désignant les coefficients de Fresnel pour les deux surfaces de séparation (0, 1) et (1, 2) et avec

$$2jm = 4\pi j \frac{d_1}{\lambda} \sqrt{n_1^2 - n_0^2 \sin^2\theta_0}.$$

Avec nos notations, on a

$$e^{2jm} = e^{4\pi \frac{d_1}{\lambda} j n_0 (p - jq)} = e^{4\pi n_0 q \frac{d_1}{\lambda}} e^{4\pi j n_0 p \frac{d_1}{\lambda}}.$$

et, comme les milieux extrêmes sont identiques

$$-\frac{r_2}{r_1} = 1 \qquad \text{et} \qquad -r_1 r_2 = r_1^2.$$

Pour déterminer le facteur de réflexion $R_{\perp}$ de la lame pour diverses incidences, on porte dans le plan de la variable complexe le point A (+1), le point B (r_1^2) et le point M (e^{2jm}) (de module $e^{4\pi q \frac{d_1}{\lambda}}$ et d'argument $4\pi p \frac{d_1}{\lambda}$ rad ou $800\, p \frac{d_1}{\lambda}$ grades).

On mesure les longueurs $\overline{MA}$ et $\overline{MB}$ et l'on a

$$R_{\perp} = \rho_1^2 \frac{\overline{MA}^2}{\overline{MB}^2},$$

ρ_1 désignant le module du coefficient de Fresnel.

Le tableau suivant permet la comparaison entre nos résultats et ceux de Scandone et Ballerini.

	θ_0.........	0°.	10°.	20°.	30°.	40°.
$R_{\perp}$	B.......	0,1219	0,1252	0,1360	0,1552	0,1887
	S et B...	0,1217	—	—	0,1546	—

	θ_0.........	50°.	60°.	70°.	80°.
$R_{\perp}$	B.......	0,2458	0,343	0,515	0,783
	S et B...	-	0,3419	-	—

Ici encore la précision est satisfaisante puisque le plus grand écart n'atteint que 4/1000 en valeur relative.

Nous voyons donc, grâce aux résultats précédents, que notre méthode graphique permet d'obtenir rapidement et avec une précision largement suffisante dans la pratique, les valeurs des facteurs de réflexion et des changements de phase en incidence oblique. Ceci, bien entendu, n'est vrai qu'à la condition de construire les abaques avec soin et à une échelle suffisante (unité = 10 cm).

Manuscrit reçu le 12 mars 1952.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] MALÉ D. — *J. Physique Rad.*, 1950, **11**, 332.
[2] SCANDONE F. et BALLERINI L. — *Nuovo Cimento*, 1946, **3**, 96.
[3] ABELÈS F. — *Ann. Physique*, 1950, **5**, 738.
[4] COTTON P. — *Ann. Physique*, 1947, **2**, 209.

RÉABSORPTION DU RAYONNEMENT DIFFUSÉ DANS UNE CHAMBRE D'IONISATION

Par H. TELLEZ-PLASENCIA,
Chargé de Recherches au C. N. R. S.,
Laboratoire Central des Services chimiques de l'État.

et P. THÉRON,
Professeur au Lycée Janson-de-Sailly, de Paris.

Sommaire. — Les auteurs appliquent les formules déduites dans un travail précédent, pour calculer la réabsorption du rayonnement de fluorescence émis et réabsorbé dans une chambre d'ionisation, au cas analogue de la réabsorption du rayonnement modifié par effet Compton. La correction peut être importante lorsque l'absorption photoélectrique est faible vis-à-vis de la diffusion.

Dans un travail précédent, que nous désignerons par I [1], l'un de nous a exposé une théorie permettant de passer des processus de dégradation de l'énergie d'un faisceau de rayons X dans un absorbant et notamment dans un gaz, aux mesures de cette énergie par l'ionisation qu'elle y produit. Un article suivant de nous deux, que nous désignerons par II [2] a permis d'introduire une correction importante, concernant l'excès d'ionisation produit par la réabsorption du rayonnement de fluorescence dans l'enceinte de mesure, correction nécessaire dans le cas des gaz lourds.

Nous avions négligé la correction de l'effet analogue, concernant la réabsorption du rayonnement diffusé par effet Compton et réabsorbé sur place, avant d'avoir quitté la chambre d'ionisation. Or, cette correction n'est pas négligeable dans le cas des gaz légers et notamment de l'air.

En effet, la formule [I, (2)], qui établit le rapport entre le travail d'ionisation W et l'énergie incidente I_0, peut être présentée sous la forme suivante :

$$W = CI_0 \frac{\alpha\tau + \sigma_E}{\mu}(1 - e^{-\mu X}) = CI_0 F(\lambda), \qquad (1)$$

avec :

C, constante, dépendant du potentiel de formation d'une paire d'ions dans le gaz;
α, coefficient de formation de photoélectrons;
τ, coefficient d'absorption photoélectrique;
σ_E, coefficient de formation d'électrons de recul;
μ, coefficient d'absorption totale;
X, longueur de la chambre d'ionisation (pour un gaz à la pression p, en atmosphères, on prend pX).

Dans le cas d'un gaz léger, $\alpha = 1$; la fraction qui figure dans la formule (1) peut s'écrire

$$\frac{\tau + \sigma_E}{\tau + \sigma_C}, \qquad (2)$$

σ_C étant le coefficient de diffusion totale; $\sigma_C = \sigma_E + \sigma_S$ exprime la somme des fractions d'énergie émises sous forme d'électrons de recul (σ_E) et de photons modifiés (σ_S). Or, cette dernière fraction, que l'on considère comme totalement perdue, ne l'est qu'en partie; les photons incidents, plus ou moins déviés, et ayant perdu une portion de leur énergie initiale sont, en partie, réabsorbés. L'effet de la diffusion est, en somme, équivalent à un élargissement du faisceau et à une augmentation de sa longueur d'onde. La fraction (2) est, pour des longueurs d'onde courtes, très inférieure à l'unité, car $\tau < \sigma_C$ et $\sigma_E < \sigma_C$; la réabsorption tend à augmenter le numérateur et peut, de ce fait, modifier sensiblement la valeur calculée de W.

Le calcul de la correction se fait suivant un procédé analogue à celui de notre travail II (voir *fig.* 1 de cet article). Si la fenêtre d'entrée R_2 reçoit une énergie I_0 (dans ce cas, il serait moins commode de raisonner, comme dans II, sur le nombre des quanta), l'élément de volume dv, placé à la profondeur x, recevra et réémettra sous forme de photons modifiés la fraction de I_0 exprimée par (1)

$$dI_S = e^{-\mu x}\sigma_S\, dv \qquad (3)$$

l'élément dv', placé à la distance l de dv, réabsorbe, et transforme en travail électronique, la fraction

$$dI_{S'} = dI_S \frac{1}{4\pi l^2} e^{-\mu_D l}\varepsilon_D\, dv'. \qquad (4)$$

La seule différence de cette formule avec [II, (2)], réside dans le fait que μ_D = coefficient d'absorption du rayonnement diffusé et $\varepsilon_D = \tau_D + \sigma_{ED}$ = fraction de cette absorption transformée en travail électronique, se rapportent à l'ensemble de l'atome diffusant et non pas à un seul de ses niveaux.

En tout, l'élément dv' aura la probabilité de rece-

(1) Les symboles sans indice ou avec un indice autre que D, concernent le rayonnement incident. L'indice D correspond au rayonnement diffusé.

voir et d'utiliser, pour une unité d'énergie incidente sur la surface du cylindre, la fraction

$$dI_{S'} = \frac{\sigma_S \varepsilon_D}{4\pi l^2} e^{-\mu x} e^{-\mu_D l'} dv \, dv' \quad (5)$$

analogue à [II, (3)].

Ici apparaît une différence avec le cas du rayonnement de fluorescence; la longueur d'onde du rayonnement diffusé varie avec la direction. ε_D et μ_D sont donc des fonctions de l'angle de diffusion et devraient figurer comme variables dans l'intégration. La quantité d'énergie diffusée varie aussi suivant l'angle φ de diffusion (angle formé par les directions du rayonnement incident et diffusé) et cette variation dépend également de la longueur d'onde incidente λ_0; l'ellipsoïde de diffusion s'allonge lorsque λ_0 décroît.

Pour des valeurs moyennes de λ_0 ($\lambda_0 \geqq 0,2$ Å), on peut admettre, en première approximation, une distribution uniforme de l'énergie diffusée dans tout l'espace. Il suffit alors d'attribuer une longueur d'onde moyenne du rayonnement diffusé, de calculer sur elle μ_D et ε_D et de faire l'intégration d'après les formules calculées pour le cas de la fluorescence.

La longueur d'onde λ_φ diffusée suivant un angle φ est exprimée par

$$\lambda_\varphi = \lambda_0 + \frac{h}{mc}(1 - \cos\varphi); \qquad \frac{h}{mc} = \Lambda = 0,0243 \text{ Å}. \quad (6)$$

Le champ de variation de λ_φ, indépendant de λ_0, est de $2\Lambda = 0,0486$ Å. L'erreur commise en prenant une moyenne de λ_φ est donc d'autant plus petite que λ_0 est plus grande.

Dans $\mu_D = \tau_D + \sigma_{CD}$ et dans $\varepsilon_D = \tau_D + \sigma_{ED}$, c'est évidemment le terme en τ qui montre la plus forte variation en fonction de λ; les deux termes de diffusion varient peu. Le problème se réduit donc à trouver une valeur moyenne de τ entre λ_0 et $\lambda_0 + 2\Lambda$. On pourrait évidemment prendre la valeur de τ correspondant à $\lambda_0 + \Lambda$; mais il est facile d'obtenir une véritable moyenne.

Dans la région envisagée, on peut faire avec très peu d'erreur : $\tau = q\lambda^3$ (2).

(2) Dans un travail qui paraîtra prochainement l'un de nous (H. T.-P.) montre que le coefficient d'absorption massique de l'air, d'après les mesures expérimentales de plusieurs auteurs, peut être exprimé par la formule

$$\log\frac{\tau}{\rho} = 0,3434 + 3,077\log\lambda + 0,1264\lambda^{-0,525}.$$

Alors,

$$\log q \simeq 0,3434 + 0,1264\lambda^{-0,525}.$$

La moyenne de τ est donnée par

$$\tau_D = \frac{q\int_0^\pi \left[\lambda_0 + \frac{h}{mc}(1-\cos\varphi)\right]^3 d\varphi}{\int_0^\pi d\varphi}. \quad (7)$$

La solution est immédiate :

$$\tau_D = q\lambda_D^3 = q(\lambda_0 + \Lambda)\left(\lambda_0 + 2\lambda_0\Lambda + \frac{5}{2}\Lambda^2\right). \quad (8)$$

De là, on déduit λ_D et ensuite μ_D et ε_D. La variation de q en fonction de λ est très faible : q varie de 3,67 pour 0,24 Å à 3,08 pour 0,64 Å.

Dans ces conditions, l'intégration se fait comme dans II et aboutit à une formule analogue à [II, (13)]. Nous aurons

$$I_D = \frac{\pi}{2}\sigma_S \varepsilon_D R_1^2 X \frac{1 - e^{-\mu X}}{\mu} \times \left[F(U) - F(\sqrt{U^2 + T^2}) + \int_0^1 G(t) H(t)\, dt\right] \quad (9)$$

avec

$$F(\xi) = \int_\xi^\infty \frac{e^{-\xi}}{\xi} d\xi; \qquad U = \mu_D X; \qquad T = \mu_D R_2; \quad (10)$$

$$G(t) = 1 + \frac{\sin h \frac{\mu X t}{2}}{\frac{\mu X t}{2}} \, \frac{\sin h \frac{\mu X(1-t)}{2}}{\sin h \frac{\mu X}{2}}, \quad (11)$$

$$H(t) = e^{-Ut} - \frac{U^2 t^2}{T^2 + U^2 t^2} e^{-\sqrt{T^2 + U^2 t^2}}, \quad (12)$$

$$\gamma = \frac{1 - e^{-\mu X}}{\mu}. \quad (13)$$

Et, en appelant K l'expression entre crochets de la formule (9),

$$I_D = \frac{\pi R_1^2 X}{2} K \varepsilon_D \sigma_S \gamma = \delta\sigma_S\gamma. \quad (14)$$

I_D indique la fraction d'énergie diffusée et réabsorbée dans la chambre d'ionisation lorsque le diaphragme d'entrée reçoit l'unité d'énergie incidente. Cette expression s'ajoute donc, comme facteur de I_0, à la formule (1); comme il y apparaît les facteur $\sigma_S\gamma$, on voit, en comparant les formules (1) et (14), que l'on peut écrire la première (avec $\alpha = 1$ pour les cas où la diffusion est importante) :

$$W = CI_0 \frac{\tau + \sigma_E + \delta\sigma_S}{\mu}(1 - e^{-\mu X}).$$

La correction constitue donc un terme de diffusion supplémentaire.

Manuscrit reçu le 25 février 1952.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Tellez-Plasencia H. — *J. Physique Rad.*, 1948, **9**, 230-235.

[2] Tellez-Plasencia H. et Théron P. — *J. Physique Rad.*, 1950, **11**, 93-96.

EXPOSÉS ET MISES AU POINT BIBLIOGRAPHIQUES

INTRODUCTION A L'ÉTUDE COMPARÉE DU MODÈLE NUCLÉAIRE DE M. MAYER ET DES DÉSINTÉGRATIONS β DES NOYAUX

Par M. TROCHERIS.

Commissariat à l'Énergie atomique.
Laboratoires du Fort de Châtillon, Fontenay-aux-Roses (Seine).

Sommaire. — On rappelle dans cet article les notions générales et les conventions de langage qui sont nécessaires pour entreprendre une comparaison systématique entre les prédictions du modèle nucléaire de M. Mayer sur les noyaux de A impair et les données expérimentales sur la radioactivité β. Le modèle de M. Mayer est présenté comme un cas particulier du modèle des particules indépendantes. Après un résumé des principaux résultats de la théorie de la radioactivité β, on donne une méthode pour déterminer le changement de spin et de parité dans une transition β.

Cet article constitue une introduction à un travail de comparaison entre les données expérimentales sur les désintégrations β des noyaux et les prévisions théoriques du modèle nucléaire des couches. Un tel modèle du noyau a été proposé sous diverses formes pour rendre compte principalement des spins et des parités des noyaux [1, 2, 3, 4]. On choisira le modèle particulier de Mme Maria Goeppert-Mayer, appelé aussi modèle du couplage *j-j*. Il rend très bien compte des mesures de spin de noyaux de nombre de masse A impair, et il est couramment utilisé dans les discussions de schémas de désintégration. L'étude des désintégrations β permet de le vérifier sur de nombreux noyaux dont le spin n'est pas mesuré. Dans une désintégration β la relation entre la période et l'énergie maximum du β émis, ainsi que le spectre des énergies de ce β, dépendent beaucoup des spins et des parités du noyau initial et du noyau final. Comme on le verra, l'étude de la désintégration permet de limiter à une ou deux valeurs la différence entre les spins initial et final du noyau et de déterminer s'il y a ou non changement de parité. On étudiera systématiquement pour les noyaux de A impair l'accord entre ces conditions imposées par la transition β et les prédictions du modèle pour les spins et les parités des noyaux initial et final.

On peut envisager un tel travail de plusieurs façons selon qu'on cherche des renseignements sur la radioactivité β ou sur le modèle de M. Mayer. Dans le présent Mémoire, on se propose de vérifier et éventuellement de perfectionner le modèle de M. Mayer en tirant des transitions β des renseignements sur les fonctions d'onde des noyaux. On considère le modèle de M. Mayer, autant que possible, comme un modèle théorique et non comme une suite de règles empiriques. Il semble alors nécessaire de rappeler dans cet article les principes généraux et le langage du modèle des particules indépendantes ou du modèle quasi atomique et de présenter le modèle de M. Mayer comme un cas particulier de ce modèle plus général. D'autre part, il n'y a pas de solution standard au problème de déterminer le changement de spin et de parité dans une transition β. Cet article contient donc aussi un bref exposé de la méthode qui sera employée pour résoudre ce problème. L'exposé de la méthode est précédé d'un rappel général du langage de la radioactivité β qui n'est pas forcément bien connu de ceux qui s'intéressent au modèle nucléaire de M. Mayer.

L'étude comparée de la radioactivité β et du modèle des couches a déjà été entreprise par plusieurs auteurs [5, 6] et a déjà fait l'objet de deux publications importantes [7, 8]. Le présent travail a été fait indépendamment de ces deux publications, qui sont parvenues à l'auteur pendant la période finale de rédaction. Il n'a pas paru inutile de publier ce travail, car aucune des études antérieures n'a été faite dans le but de vérifier et de perfectionner le modèle de M. Mayer en essayant de le prendre au sérieux, comme un modèle théorique. Le Mémoire de Mayer, Moskowski et Nordheim [7] est plutôt une « clarification des faits » sur la radioactivité β, à la lumière du modèle de M. Mayer. Les auteurs considèrent seulement les règles empiriques sur le spin et la parité des noyaux de A impair, en précisant le moins possible le modèle, et ils cherchent à obtenir un ensemble cohérent en appliquant ces règles aux noyaux initiaux et finaux des désintégrations β. Le travail japonais [8] est fait délibérément dans le but de vérifier et de perfectionner la théorie de la radioactivité β en supposant valables les règles empiriques qui sont à la base du modèle de M. Mayer. Nordheim [7] a étudié aussi les noyaux

de A pair. Comme le modèle de M. Mayer ne s'applique pas sans extension aux noyaux de A pair, cette étude est particulièrement complexe et elle ne sera pas abordée dans ce Mémoire.

I. — Le modèle des particules indépendantes.

Ce modèle peut être appliqué à des systèmes compliqués de particules identiques en interaction, le plus souvent pour en déterminer l'état fondamental et les premiers états excités. Il n'a été utilisé avec un réel succès jusqu'ici que pour les atomes. Il consiste à supposer que les particules se déplacent indépendamment les unes des autres dans un champ de forces commun dérivant d'un potentiel. Ce champ représente approximativement, pour chaque particule, l'action moyenne des autres particules ainsi que les forces extérieures s'il y en a. On suppose qu'il est le même pour toutes les particules, mais qu'il change si l'on modifie le système en lui ajoutant ou retirant des particules. Dans le cas d'un atome, par exemple, chaque électron est supposé soumis à un champ électrostatique produit par le noyau et une distribution de charges moyenne qui représente tous les autres électrons. On pourrait calculer le potentiel moyen dû à l'action des autres particules si l'on connaissait la fonction d'onde Ψ du système. Inversement, soit V ce potentiel supposé connu, on peut calculer Ψ par le modèle des particules indépendantes. Si le calcul du potentiel moyen, avec la fonction d'onde ainsi obtenue, redonne V, à une bonne approximation, le potentiel V est dit « self-consistent ». Un tel potentiel self-consistent a été introduit pour les atomes par Hartree.

Pour que la méthode du champ self-consistent soit applicable, il faut que le système des particules indépendantes dans le champ self-consistent soit une représentation assez bonne du système réel étudié pour constituer une première approximation. La différence entre le champ self-consistent et l'ensemble des actions et interactions réelles doit être assez petite pour qu'on puisse la traiter comme une perturbation. C'est ce que nous supposerons toujours dans la suite. On peut alors obtenir des approximations meilleures par le calcul des perturbations.

1. Nomenclature des états des particules indépendantes. — Une particule, dans un champ de forces dérivant d'un potentiel, a des états liés qui correspondant à des valeurs discrètes de son énergie. Nous supposerons que le champ est central, ce qui permet de classer ces états à l'aide des nombres quantiques habituels : le nombre quantique principal n, la longueur du vecteur moment cinétique orbital l, une de ses composantes l_z, et une composante de spin s_z. Les états de même n et l correspondent à un même niveau d'énergie et ils sont au nombre de $(2s+1)(2l+1)$ pour une particule de spin s puisque l_z peut prendre $2l+1$ valeurs de $-l$ à $+l$ et s_z peut prendre $2s+1$ valeurs de $-s$ à $+s$.

Le système réel à étudier, atome par exemple, est remplacé en première approximation par un certain nombre N de particules identiques, qui sont placées dans le même champ central et qui n'interagissent pas entre elles. Le système de ces N particules indépendantes est dans un état stationnaire lorsque chaque particule est dans un état stationnaire individuel. Nous appellerons les états quantiques d'une particule dans le champ, états *individuels*, pour les distinguer des états quantiques du système des N particules. Nous considérons seulement dans la suite des électrons ou des nucléons de même espèce. Ces particules obéissent au principe de Pauli : il y en a une au plus dans chaque état individuel et, comme elles ont le spin $\frac{1}{2}$, il y en a au plus $2(2l+1)$ qui ont l'énergie d'un niveau individuel défini par n et l. L'énergie totale du système des particules indépendantes est égale à la somme des énergies individuelles des particules et elle ne dépend que de la répartition des particules dans les niveaux individuels.

Cette répartition définit ce qu'on appelle une configuration. Les configurations sont représentées habituellement en notations spectrographiques : $(1s)^2\,(2p)^3$ par exemple, signifie que deux particules appartiennent au niveau individuel $1s\ (n=1,\ l=0)$ et trois au niveau individuel $2p\ (n=2,\ l=1)$. La configuration d'énergie minima du système des N particules indépendantes est obtenue évidemment en remplissant progressivement les niveaux d'énergie croissante avec les particules, le remplissage d'un niveau ne commençant que lorsque celui des niveaux inférieurs est terminé.

Étant donné une configuration, les énergies des particules sont définies, mais non les états stationnaires individuels qu'elles occupent. En effet, une particule qui a une énergie définie par les nombres quantiques n et l peut occuper l'un quelconque de $2(2l+1)$ états stationnaires individuels distincts. Il en résulte qu'à une même configuration peuvent correspondre plusieurs et même un grand nombre d'états stationnaires du système des particules indépendantes. Les niveaux d'énergie de ce système sont donc dégénérés. Toutefois, si la configuration ne comprend que des niveaux individuels remplis au maximum, les états individuels occupés sont déterminés : ce sont les $2(2l+1)$ états qui correspondent à chacun des niveaux remplis; l'état stationnaire de l'ensemble des particules est donc aussi déterminé.

2. Différents modes de couplage. — Si le modèle est applicable au système étudié, l'hamiltonien H du système diffère peu de l'hamiltonien H_0 des particules dans le champ self-consistent :

$$H = H_0 + \mathcal{H}$$

et la différence $\mathcal{H}$ peut être considérée comme une perturbation. En général $\mathcal{H}$ est très compliqué, mais heureusement, il est souvent possible de l'écrire comme la somme de plusieurs termes dont chacun est supérieur au suivant :

$$\mathcal{H} = H_1 + H_2 + H_3 + \ldots,$$
$$H_1 \gg H_2 \gg H_3 \ldots.$$

Dans les atomes les divers termes sont les suivants :

1° la partie de l'interaction électrostatique entre les électrons dont le champ self-consistent ne tient pas compte : ΔH_s;
2° l'interaction magnétique entre les électrons qui se réduit pratiquement à une interaction spin-orbite : H_m;
3° l'interaction magnétique entre les électrons et le noyau, qui donne lieu à la structure hyperfine.

Le troisième terme est toujours très inférieur aux deux autres. L'importance relative des deux premiers n'est pas la même pour tous les atomes. Il y a deux cas particuliers très importants :

1° $\Delta H_s \gg H_m$ *cas dit du couplage Russel Saunders.* — Dans ce cas, l'approximation immédiatement supérieure à celle des particules indépendantes consiste à tenir compte de ΔH_s et à négliger H_m. On peut alors classer les états stationnaires du système par la valeur propre $L(L+1)$ de $(\vec{L})^2$ carré du moment cinétique orbital total et la valeur propre $S(S+1)$ de $(\vec{S})^2$ carré du spin total. Une valeur de L et une valeur de S définissent un « terme ». Pour les états stationnaires qui appartiennent au même terme, l'énergie approchée $H_0 + \Delta H_s$ a la même valeur. La fonction d'onde d'un état stationnaire de l'atome réel appartiendra presque entièrement à un terme et, à cause de H_m, elle aura de petites composantes appartenant à d'autres termes.

2° $H_m \gg \Delta H_s$ *cas dit du couplage j–j.* — Dans ce cas, on écrit pratiquement H_m sous la forme

$$H_m = \sum_i A_i \vec{l}_i . \vec{s}_i .$$

la somme étant étendue à toutes les particules. Les carrés des moments cinétiques orbitaux individuels $(\vec{l}_i)^2$ commutent alors avec $H_0 + H_m$, ainsi que les composantes des moments cinétiques résultants individuels $\vec{j}_i = \vec{l}_i + \vec{s}_i$. Si donc, on tient compte de H_m et qu'on néglige ΔH_s, les états stationnaires de même énergie correspondent à des valeurs déterminées $l_i(l_i+1)$ des $(\vec{l}_i)^2$ et $j_i(j_i+1)$ des $(\vec{j}_i)^2$. Dans un état stationnaire de l'atome réel, les l_i et les j_i sont approximativement déterminés.

Lorsqu'on a tenu compte des deux perturbations ΔH_s et H_m il ne reste plus comme bons nombres quantiques rigoureux que le carré $(\vec{J})^2$ du moment cinétique total, une de ses composantes J_z et la parité de la fonction d'onde. Ces trois grandeurs sont des constantes du mouvement pour un système quelconque du moment qu'il n'est soumis à aucune action extérieure.

3. Modèle à couplage spin-orbite fort. — On peut imaginer que dans un système de particules, il existe un couplage spin-orbite trop fort pour être considéré comme une perturbation ; ou, plus généralement, on peut supposer que l'hamiltonien H_0 du système, en première approximation, est une somme d'opérateurs qui agissent sur les coordonnées d'espace et de spin d'une seule particule et qui ne diffèrent que par la particule sur laquelle ils agissent. Dans ce cas, on peut définir les états d'une particule par n, j, j_z et la parité ϖ de la fonction d'onde de la particule. Si la particule a le spin $\frac{1}{2}$, la fonction d'onde d'un tel état individuel ne peut contenir que deux moments orbitaux $l = j \pm \frac{1}{2}$ et pour que sa parité soit définie, elle ne doit contenir que l'un d'eux. Pour les particules de spin $\frac{1}{2}$, l est donc un bon nombre quantique qui peut remplacer la parité ϖ pour définir les états individuels. Les niveaux individuels d'énergie sont alors définis par n, j, l ou ϖ. Le système réel étudié est représenté, en première approximation, par un système de particules indépendantes distribuées dans ces états individuels et l'on peut dire qu'une répartition des particules dans les divers niveaux individuels définit une configuration.

4. Calcul des niveaux d'énergie. — Pour passer, par perturbations successives, des états stationnaires du système des particules indépendantes à ceux du système réel, on utilise la méthode de perturbation des états stationnaires dégénérés [9]. Prenons pour fixer les idées la perturbation ΔH_s dans le modèle du couplage spin orbite fort. Le système non perturbé est le système des particules indépendantes à couplage spin orbite fort tel qu'il vient d'être défini. Parmi ses états stationnaires, ceux qui appartiennent à une même configuration C_n correspondent à la même énergie W_n et peuvent être représentés par des fonctions d'onde orthonormées $\Phi_n^{(i)}$. Si l'on calcule la perturbation du premier ordre sur ces états, on obtient des états perturbés qui correspondent à plusieurs énergies voisines $W_n + w_{nm}$. Les w_{mn} sont les valeurs propres de la matrice

$$(j \mid \Delta H_s \mid k) = (\Phi_n^{(j)} \mid \Delta H_s \mid \Phi_n^{(k)}).$$

Ils ne dépendent que des fonctions d'onde $\Phi_n^{(i)}$ de la configuration C_n. Ce ne sont pas des valeurs propres de ΔH_s, car ils sont obtenus en diagonalisant la matrice de ΔH_s pour le système incomplet des fonctions $\Phi_n^{(i)}$. On trouve que les $W_n + w_{nm}$ sont de bonnes approximations des valeurs propres de $H_0 + \Delta H_s$, si les éléments de matrice de ΔH_s entre deux configurations différentes sont assez petits par rapport à la différence d'énergie entre les deux configurations. En appelant éléments « semi-diagonaux » de ΔH_s, ses éléments de matrice entre fonctions d'une même configuration, les éléments semi-diagonaux et non semi-diagonaux de ΔH_s peuvent *a priori* être du même ordre de grandeur. Dans ce cas, les éléments semi-diagonaux, donc aussi les w_{mn}, devront être petits, par rapport aux différences d'énergies entre les configurations. Toutefois, les éléments de matrice de ΔH_s entre deux configurations particulières peuvent être nuls à cause d'une règle de sélection. Ces deux configurations peuvent alors être très rapprochées, sans limiter la précision du calcul des niveaux perturbés.

Le calcul de perturbation du premier ordre permet aussi de déterminer les fonctions d'onde perturbées correspondant aux niveaux $W_n + w_{nm}$. Ces fonctions s'expriment au moyen des fonctions d'onde non perturbées de la configuration C_n et des autres configurations. Les composantes sur les autres configurantions sont faibles dans les mêmes conditions où les valeurs $W_n + w_{nm}$ sont de bonnes approximations des valeurs propres de $H_0 + \Delta H_s$. Ces conditions sont réalisées dans la plupart des problèmes atomiques.

5. **Application du modèle des particules indépendantes au noyau.** — Il y a deux raisons principales pour lesquelles le modèle des particules indépendantes est mal adapté à l'étude du noyau [10] :

1° Les corrélations entre les mouvements des particules sont sûrement trop fortes pour qu'il puisse exister un champ self-consistent défini avec une bonne précision.

2° Même en admettant qu'il existe un champ self-consistent, on ne possède aucun moyen de le déterminer. Il n'existe pour le noyau rien d'analogue à la méthode de Hartree pour les atomes. Aucun calcul utilisant un champ self-consistent n'a été fait pour les noyaux $5 < A < 16$ pour lesquels le modèle des particules indépendantes est généralement appliqué. Le champ moyen est choisi sans justification théorique précise, pour des raisons de simplicité. D'une façon générale, le modèle des particules indépendantes a été utilisé pour déterminer les propriétés de symétrie et la forme approximative des fonctions d'onde des niveaux les plus bas des noyaux, mais non pour calculer les énergies de ces niveaux. Ceci est compréhensible, car le calcul des énergies est beaucoup plus affecté par la forme inexacte du champ moyen que les caractères généraux des fonctions d'onde. Pour déterminer la parité ou le spin, on peut quelquefois se borner à considérer les configurations et les termes sans calcul de perturbation, et des considérations qualitatives suffisent à fixer le terme d'énergie la plus basse. Pour le calcul des énergies, les configurations à elles seules ne peuvent donner que des indications qualitatives, car la séparation des niveaux par les interactions est certainement très forte.

II. — Le modèle nucléaire de M. Mayer.

Mme Maria Gœppert-Mayer a d'abord imaginé son modèle du noyau pour expliquer les propriétés frappantes, surtout la grande énergie de liaison, des noyaux qui ont des nombres « magiques » de neutrons ou de protons, principalement 50, 82 et 126. Le modèle a permis ensuite [4] d'expliquer d'autres propriétés des noyaux, principalement les spins et les parités de l'état fondamental et même de quelques-uns des premiers états excités des noyaux de A impair.

1. **Ordre de remplissage des couches.** — Les nucléons des deux espèces, neutrons et protons, sont traités séparément par deux modèles de particules indépendantes à couplage spin orbite fort. En première approximation, on suppose que les nucléons d'une espèce se déplacent sans interactions dans un champ qui représente en partie leurs interactions et en moyenne l'action sur eux des nucléons de l'autre espèce. Pour les ambitions actuelles du modèle, il n'est pas nécessaire de préciser la forme du potentiel de ce champ dans les divers noyaux. Il suffit de connaître l'ordre dans lequel il faut remplir progressivement les niveaux individuels pour représenter correctement les noyaux formés de nombres croissants de neutrons et de protons. Nous dirons, dans la suite, que les nucléons qui sont sur un même niveau individuel d'énergie forment une couche. L'ordre de remplissage progressif de ces couches peut être suggéré par la théorie, si l'on admet que le potentiel a grossièrement, pour tous les noyaux, une forme intermédiaire entre celle du « puits carré » et celle du potentiel de l'oscillateur harmonique. En effet, cette hypothèse grossière sur la forme du potentiel suffit à déterminer l'ordre d'énergie croissante des niveaux individuels, qui est en l'absence de couplage spin-orbite, l'ordre (a) du tableau I. Cet ordre ne change pas d'un noyau à l'autre si le potentiel varie dans les limites supposées. C'est donc aussi l'ordre dans lequel il faut remplir progressivement les couches pour obtenir la configuration d'énergie minima de tous les noyaux.

M. Mayer a introduit, pour expliquer les nombres magiques, un couplage spin-orbite qui sépare le niveau individuel nl en un niveau moins élevé avec $j = l + \frac{1}{2}$ et un niveau plus élevé avec $j = l - \frac{1}{2}$, la séparation étant d'autant plus forte que l est plus grand. L'ordre théorique de remplissage des couches est alors l'ordre (b) du tableau I. Il fournit une configuration pour l'état fondamental de tous les noyaux. M. Mayer l'a adopté pour les neutrons et les protons avec seulement quelques modifications de détail [4].

Tableau I.

(a)............	$1s$ $2p$		$3d$ $2s$		$4f$		$3p$ $5g$		$4d$ $3s$ $6h$		$5f$ $4p$ $7i$	
(b)............	$s\frac{1}{2}p\frac{3}{2}p\frac{1}{2}$		$d\frac{5}{2}d\frac{3}{2}s\frac{1}{2}$		$f\frac{7}{2}$		$f\frac{5}{2}p\frac{3}{2}p\frac{1}{2}g\frac{9}{2}$		$g\frac{7}{2}d\frac{5}{2}d\frac{3}{2}s\frac{1}{2}h\frac{11}{2}$		$h\frac{9}{2}f\frac{7}{2}f\frac{5}{2}p\frac{3}{2}p\frac{1}{2}i\frac{13}{2}$	
ν..............		16		20		28		50		82		126
Neutrons...									$d\frac{5}{2}g\frac{7}{2}s\frac{1}{2}d\frac{3}{2}h\frac{11}{2}$		$f\frac{7}{2}h\frac{9}{2}f\frac{5}{2}p\frac{3}{2}p\frac{1}{2}i\frac{13}{2}$	
(c)............	$s\frac{1}{2}p\frac{3}{2}p\frac{1}{2}$		$d\frac{5}{2}s\frac{1}{2}d\frac{3}{2}$		$f\frac{7}{2}$		$p\frac{3}{2}f\frac{5}{2}p\frac{1}{2}g\frac{9}{2}$					
Protons....									$g\frac{7}{2}d\frac{5}{2}d\frac{3}{2}s\frac{1}{2}h\frac{11}{2}$			

2. Règle de couplage des nucléons. — Une fois trouvée la configuration de l'état fondamental, il faut savoir comment choisir parmi les états stationnaires qui appartiennent à cette configuration. Il suffit pour cela de savoir quelle perturbation appliquer au système des particules indépendantes. L'état stationnaire perturbé d'énergie minima est déterminé en supposant simplement que la perturbation est constituée par des forces de très court rayon d'action entre les nucléons. Dans cet état les nucléons d'une même couche sont couplés suivant la règle de M. Mayer : un nombre pair de nucléons d'une même couche ont un moment cinétique total $J = 0$ et la parité paire, et un nombre impair le même moment cinétique total $J = j$, et la même parité qu'un nucléon seul sur la couche. Cette règle est vérifiée séparément par les protons et les neutrons, chacune des deux espèces sur ses propres couches.

Les noyaux pairs-pairs ont donc un spin nul d'après le modèle de M. Mayer. Les noyaux de A impair ont un spin égal au j de la couche incomplète qui contient un nombre impair de nucléons; cette couche sera appelée dans la suite la « couche active »; elle est formée de protons ou de neutrons suivant que c'est le nombre de protons ou de neutrons qui est impair. On désignera par ν celui qui est impair des deux nombres de protons et de neutrons d'un noyau de A impair. On peut dire aussi que le spin d'un noyau de A impair est égal au j du « nucléon dépareillé », en imaginant que les nucléons d'une même couche se couplent par paires. Le modèle ne permet pas, dans son état actuel, de prédire les spins des noyaux impairs-impairs, car il manque une règle de couplage du neutron et du proton dépareillés. Les prédictions sur la parité sont : pour les noyaux pairs-pairs, la parité paire; pour les noyaux de A impair, la parité du nucléon dépareillé; et pour les noyaux impairs-impairs le produit des parités des deux nucléons dépareillés.

3. Énergie de liaison du noyau. — Le modèle de M. Mayer ne permet que des considérations qualitatives sur l'énergie de liaison d'un noyau, puisque le potentiel moyen n'est pas connu exactement. Nous avons vu que dans un modèle de particules indépendantes à couplage spin-orbite fort, on pouvait déterminer de façon approchée les niveaux d'énergie du système étudié par un calcul de perturbation du premier ordre. Pour un état stationnaire qui appartient à une seule configuration, l'énergie perturbée est égale à la somme $W_n + w_{nm}$ de l'énergie W_n de la configuration et de la valeur moyenne w_{nm} pour l'état considéré du supplément d'interaction statique ΔH_s. Comme M. Mayer, nous raisonnerons en supposant que ΔH_s se réduit à une interaction de très court rayon d'action entre les nucléons d'une même couche seulement. On peut alors parler de l'énergie de liaison des nucléons sur une couche et considérer l'énergie d'un état stationnaire du noyau comme la somme de l'énergie de la configuration et des énergies de liaison des nucléons des diverses couches. On trouve que cette énergie de liaison des nucléons d'une couche est proportionnelle à $2j + 1$ et au nombre de paires de nucléons sur la couche; elle ne change pas quand on ajoute un nucléon dépareillé à un nombre pair de nucléons sur la couche.

On peut maintenant expliquer qualitativement les nombres magiques. Les noyaux ont en moyenne une énergie de liaison proportionnelle au nombre total A de nucléons. Pour un noyau qui a 50 neutrons ou 50 protons, l'énergie de liaison par nucléon est particulièrement grande, à cause de la forte liaison des nucléons sur la couche $g\frac{9}{2}$. Par contre pour 51, 52, ... neutrons ou protons l'énergie de liaison par nucléon, redescend rapidement parce que les 51ᵉ, 52ᵉ, ... nucléons sont sur le niveau individuel d'énergie $g\frac{7}{2}$ qui est beaucoup plus élevé que $g\frac{9}{2}$, puisque la séparation entre les niveaux $j = l \pm \frac{1}{2}$ est grande lorsque l est grand. Les deux autres nombres magiques 82 et 126 correspondent à la limite entre les couches $h\frac{11}{2}$, $h\frac{9}{2}$ pour 82 et $i\frac{13}{2}$, $i\frac{11}{2}$ pour 126.

4. Le processus de détournement. — Souvent, lorsque le modèle prédit pour le fondamental d'un noyau de A impair, un spin élevé, $\frac{9}{2}$ par exemple, si $40 < \nu < 50$, on observe en fait le spin de l'avant-dernière couche occupée, soit $\frac{1}{2}$. M. Mayer suppose que l'avant-dernière couche cède un nucléon à la dernière couche. Au lieu de la configuration ... $\left(p\frac{1}{2}\right)^2 \left(g\frac{9}{2}\right)^3$ par exemple, on aurait ... $\left(p\frac{1}{2}\right) \left(g\frac{9}{2}\right)^4$. Les nucléons de la couche active détournent un nucléon de l'avant-dernière couche qui devient ainsi la couche active. Nous conviendrons d'appeler ce processus le « détournement ». On peut le justifier qualitativement : si, en partant de la configuration ... $\left(p\frac{1}{2}\right)^2 \left(g\frac{9}{2}\right)^3$, un des nucléons $p\frac{1}{2}$ passe à la couche $g\frac{9}{2}$, il saute sur un niveau individuel d'énergie plus élevée, mais son énergie de liaison devient beaucoup plus forte, et il se peut qu'au total l'énergie ait diminué. On considérera que ce processus de détournement est possible lorsque la dernière couche correspond à un spin beaucoup plus élevé que l'avant-dernière, c'est-à-dire pratiquement lorsque la dernière couche est $g\frac{9}{2}$, $h\frac{11}{2}$ ou $i\frac{13}{2}$.

5. Représentation des états isomères et excités. — Lorsque, dans l'état fondamental d'un noyau de A impair, il y a détournement d'un nucléon au profit de la couche $g\frac{9}{2}$ ou $h\frac{11}{2}$, on retrouve toujours la configuration normale sans détournement dans un état isomère de spin élevé $\frac{9}{2}$ ou $\frac{11}{2}$. Ou inversement lorsque le fondamental est un état de spin élevé $\frac{9}{2}$ ou $\frac{11}{2}$, la configuration obtenue par le détournement représente un état isomère. De plus, certains noyaux

dont la couche active précède exactement une couche de spin plus élevé, principalement $g\frac{9}{2}$ ou $h\frac{11}{2}$, ont un état isomère dont le spin et la parité sont ceux de $g\frac{9}{2}$ ou $h\frac{11}{2}$. La configuration du fondamental est, par exemple $\ldots \left(f\frac{5}{2}\right)^6 \left(p\frac{1}{2}\right)$; celle de l'état isomère doit être alors $\ldots \left(f\frac{5}{2}\right)^6 g\frac{9}{2}$: on l'obtient, en faisant sauter le nucléon dépareillé $p\frac{1}{2}$ au niveau individuel supérieur $g\frac{9}{2}$.

Comme les états isomères ne sont que des états excités de longue vie, on peut espérer représenter d'autres états excités par les mêmes procédés que les isomères : soit en faisant sauter le nucléon dépareillé dans la couche au-dessus, soit en faisant sauter dans la couche active un nucléon de la couche en dessous. En fait, pour les noyaux de A impair, on trouve que les spins et les parités des deux ou trois premiers états excités, lorsqu'ils sont connus expérimentalement, sont bien caractéristiques des couches voisines de la couche active du fondamental. Toutefois, il n'apparaît pas de relation rigoureuse entre l'ordre d'excitation croissante des états et l'ordre des couches.

6. **Ordre empirique de remplissage des couches.** — L'ordre adopté par M. Mayer [4] pour le remplissage progressif des couches est l'ordre théorique (*b*), avec quelques modifications introduites pour mieux rendre compte des spins des noyaux de A impair. Cet ordre est différent pour les protons et les neutrons à partir de $\nu = 51$ et il est indiqué en (*c*) dans le tableau I. C'est celui que nous adopterons dans ce Mémoire.

III. — La radioactivité β des noyaux.

1. **Émission d'une paire électron-neutrino par un nucléon.** — Le phénomène élémentaire de la radioactivité β est l'émission par un nucléon (neutron ou proton) d'un électron (négatif ou positif) et d'un neutrino que l'on suppose de masse nulle et de spin $\frac{1}{2}$. La loi qui gouverne cette émission n'est pas encore exactement connue. On sait que l'interaction entre les nucléons et les leptons (électrons et neutrinos) est assez faible pour qu'on puisse la traiter par un calcul de perturbation du premier ordre. Des considérations d'invariance relativiste permettent de limiter la forme de l'hamiltonien d'interaction à une combinaison linéaire de cinq formes particulières, qui correspondent aux cinq interactions appelées : scalaire, vectorielle, tensorielle, pseudo-vectorielle et pseudoscalaire.

2. **Désintégration d'un noyau.** — Dans la désintégration β d'un noyau [1], la paire électron-neutrino est émise par l'un quelconque des nucléons et l'amplitude de transition est égale à la somme des amplitudes d'émission par les divers nucléons. L'électron et le neutrino peuvent être émis avec un spin total égal à 0 ou 1; ce spin total de la paire ne dépend pas du nucléon qui l'émet, mais seulement de la forme de l'interaction qui est dite du type de Fermi dans le cas du spin 0 et du type de Gamow-Teller dans le cas du spin 1. Avec une combinaison linéaire d'interactions des deux types de Fermi et de Gamow-Teller, la paire électron-neutrino serait émise dans un état de spin total indéterminé.

La probabilité pour que la paire électron-neutrino soit émise avec un moment cinétique orbital $l\hbar$, est d'un ordre de grandeur proportionnel à $\rho^{2l} = \left(\frac{R}{\lambda_c}\right)^{2l}$, où R est le rayon du noyau et $\lambda_c = \frac{\hbar}{mc}$, la longueur d'onde de Compton de l'électron. Comme $\rho \ll 1$, seule interviendra la plus petite valeur de l possible, c'est-à-dire compatible avec la conservation du spin et de la parité. Cette valeur sera appelée l'ordre de la transition. On peut considérer que la paire électron-neutrino est émise dans un état où sont déterminés, en plus du moment cinétique orbital $l\hbar$ de la paire, les énergies cinétiques E_e et E_ν de l'électron et du neutrino et l'angle $\theta_{e\nu}$ entre leurs impulsions. La probabilité d'émission dépend, en général, de $\theta_{e\nu}$ et il y a une corrélation angulaire entre les émissions de l'électron et du neutrino.

3. **Spectre.** — La probabilité de transition intégrée sur $\theta_{e\nu}$ est encore une fonction de E_e et E_ν, ou de E_e et de l'énergie totale libérée dans la désintégration $E_0 = E_e + E_\nu + mc^2$ (mesurée dans la suite en unités mc^2). Pour une désintégration donnée, cette probabilité $p(E_e)$, ne dépend plus que de l'énergie cinétique E_e de l'électron; la fonction $p(E_e)$ est ce qu'on appelle le spectre de la désintégration β. Dans le cas particulier de l'interaction scalaire :

$$p(E_e) = G_l(E_0, E_e, Z)\,|\langle r^l Y_l \rangle|^2, \tag{1}$$

G_l dépend de l, E_0, E_e et du Z du noyau final, et est indépendant des fonctions d'ondes nucléaires; la notation $\langle r^l Y_l \rangle$ désigne l'élément de matrice nucléaire moyen [2] qui ne dépend au contraire, que des fonctions d'onde initiale et finale du noyau Ψ_i et Ψ_f et qui est défini par

$$|\langle r^l Y_l \rangle|^2 = \sum_{M'} |\langle r^l Y_l^{M-M'} \rangle|^2, \tag{2}$$

avec

$$\langle r^l Y_l^{M-M'} \rangle = \sum_{n=1}^{A} \int r_n^l Y_l^{M-M'}(\theta_n, \varphi_n)\, \Psi_i^{M*} \tau_n^{\mp} \beta_n \Psi_f^{M'}\, dV,$$

Y^m est un harmonique sphérique d'ordre l normalisé; r_n, θ_n, φ_n sont les coordonnées polaires du $n^{\text{ième}}$ nucléon; dV est l'élément d'intégration pour les coordonnées d'espace et de spin de tous les nucléons; M et M' sont les nombres quantiques magnétiques du noyau avant et après la transition; β_n est la matrice de Dirac β qui agit sur les coordonnées de spin

(1) La désintégration est appelée β_+ ou β_-, suivant que le noyau émet un électron positif ou négatif.

(2) La notation utilisée est celle de Weisskopf.

du $n^{\text{ième}}$ nucléon; $\tau_n^{\pm}$ agit sur la fonction d'onde initiale Ψ_i : il transforme le $n^{\text{ième}}$ nucléon de proton en neutron ou inversement et il donne un résultat nul quand le $n^{\text{ième}}$ nucléon est un neutron ou un proton, suivant que la transition est β_+ ou β_-.

Avec d'autres interactions $p(E_e)$ est la somme de plusieurs termes du type (1). La forme du spectre peut alors dépendre *a priori* des fonctions d'ondes nucléaires. Nous supposerons qu'avec l'interaction réelle et moyennant des approximations compatibles avec la précision des mesures, le spectre ne dépend que de l, des spins initial et final I_i et I_f, du noyau (en particulier de $\Delta I = |I_i - I_f|$) (3), et des parités initiale et finale π_i et π_f.

La forme appelée permise est celle qu'on observe pour les transitions permises ($\Delta I = 0$ ou 1, sans changement de parité). On trouve théoriquement qu'elle peut se présenter aussi pour les transitions $l = 1$, $\Delta I = 0$ ou 1, avec changement de parité. Les transitions $l = 1$, $\Delta I = 2$, avec changement de parité, donnent lieu à un spectre de forme caractéristique et bien connue [11].

4. **Transitions ordinaires et relativistes.** — Pour l'interaction scalaire, la probabilité de désintégration est obtenue en intégrant l'expression (1) de $p(E_e)$ par rapport à E_e, et pour d'autres interactions, elle est la somme de plusieurs termes de cette forme. On peut distinguer dans une telle somme deux sortes de termes : ceux dans lesquels les grandes composantes de Ψ_i se trouvent multipliées par des grandes composantes de Ψ_f et ceux dans lesquels les grandes composantes de Ψ_i ou Ψ_f se trouvent multipliées par les petites composantes de Ψ_f ou Ψ_i. On trouve que ces deux sortes de termes ne peuvent pas contribuer simultanément à la probabilité de transition. Il y a donc deux catégories de transitions que l'on appelle ordinaires pour les termes de la première sorte et relativistes pour les termes de la deuxième. Comme les petites composantes de la fonction d'onde d'un nucléon sont de l'ordre $\frac{v_n}{c}$ par rapport aux grandes (v_n étant la vitesse du nucléon), la probabilité d'une transition relativiste est donc plus petite que celle d'une transition ordinaire de même ordre l par un facteur de l'ordre de $\left(\frac{v_n}{c}\right)^2 \sim \frac{1}{30}$.

5. **Règles de sélection.** — Pour que la probabilité de transition ne soit pas nulle, il faut que le moment cinétique total et la parité soient conservés dans la transition. Ceci impose à I_i, I_f, π_i, π_f et l de satisfaire à certaines inégalités appelées règles de sélection, qui sont indiquées dans le tableau II pour les diverses transitions de même ordre l. On voit qu'à cause de la règle de sélection sur la parité, une transition d'ordre l ne peut pas être à la fois ordinaire et relativiste.

TABLEAU II.

				Ordinaire.	Relativiste.
Fermi	$J = l$	$\|I_i - I_f\| \leq J \leq I_i + I_f$	$\Pi_i \Pi_f =$	$(-1)^l$	$(-1)^{l+1}$
Gamow-Teller	$\|l - 1\| \leq J \leq l + 1$				

J est le moment cinétique total emporté par la paire électron-neutrino.

6. **Genre d'une transition.** — Pour tirer des transitions β des renseignements sur les spins et les parités des noyaux, il est utile de les classer d'après leurs règles de sélection propres. Les règles de sélection contiennent $\Delta I = |I_i - I_f|$, $I_i + I_f$ et le produit $\pi_i \pi_f$. Pour déterminer l'ordre, c'est-à-dire la plus petite valeur possible de l, seuls ΔI et $\pi_i \pi_f$ interviennent. Nous supposerons que l'interaction réelle est du type de Gamow-Teller; il est certain au moins qu'elle contient une proportion importante d'interaction de ce type. Dans ce cas, pour $\Delta I = 0$ ou 1, la plus petite valeur possible pour l est zéro.

TABLEAU III.

Ordre	0.	1.		2.		...	$l-1$.		l.	
ΔI	0 1	0 1	2	2	3		$l-1$	l	l	$l+1$
Ordinaire	0 ou 1, +	0 ou 1, —	2, —	2, +	3, +		$l-1, (-)^{l-1}$	$l, (-)^{l-1}$	$l, (-)^l$	$l+1, (-)_l$
Relativiste	0 ou 1, —		2, +		3, —			$l, (-)^l$		$l+1. (-)^{l+1}$

Les deux dernières lignes donnent le genre de la transition (ΔI, + ou —) en fonction de l'ordre, de ΔI et du caractère ordinaire ou relativiste. La place est laissée vide lorsque le genre correspondant peut être obtenu pour un ordre plus petit, avec lequel la transition se fait. Les transitions pour lesquelles ΔI est égal à l'ordre plus un sont dites du groupe A et les autres du groupe B.

Si en plus $\pi_i \pi_f = +1$, la transition peut être ordinaire d'ordre zéro, et elle l'est nécessairement en fait. Si par contre $\pi_i \pi_f = -1$, la transition doit être relativiste si elle est d'ordre zéro et ordinaire si elle est d'ordre 1; la transition réelle peut alors être un mélange de $l = 0$ relativiste et $l = 1$ ordinaire. En général, pour $\Delta I > 1$, les transitions $\Delta I = l + 1$, $\pi_i \pi_f = (-1)^l$ sont ordinaires d'ordre l et les transitions $\Delta I = l$, $\pi_i \pi_f = (-1)^l$ peuvent être ordinaires d'ordre l ou relativistes d'ordre $l - 1$

(3) Comme la paire électron-neutrino emporte un spin 0 ou 1 et un moment cinétique orbital l qui est un nombre entier, la différence ΔI est toujours un nombre entier.

ou un mélange des deux. On peut donc classer les transitions β (en employant la notation américaine « oui » quand il y a changement de parité et « non » dans le cas contraire) dans les catégories suivantes : $\Delta I = 0$ ou 1, non; $\Delta I = 0$ ou 1, oui; $\Delta I = 2$, oui; $\Delta I = 2$, non; ...; $\Delta I = l$, $\pi_i \pi_f = (-1)^l$; $\Delta I = l + 1$, $\pi_i \pi_f = (-1)^l$, ... On appellera « genre » une de ces catégories de transitions. Les relations entre le genre, l'ordre et le caractère ordinaire ou relativiste sont résumées dans le tableau III. On verra que ces genres successifs correspondent à des ordres de grandeur décroissants des éléments de matrice nucléaires moyens. Ceci permet d'identifier le genre d'une transition quand on connaît la période et l'énergie maximum de l'électron, pourvu qu'on dispose de formules commodes pour calculer approximativement les éléments de matrice nucléaires moyens.

7. **Calcul des éléments de matrice nucléaires.** —Les éléments de matrice nucléaires tels que $< r^l Y_l^{M-M'} >$ ne sont pas calculables théoriquement, puisqu'on ne connaît ni les fonctions d'onde nucléaires, ni la forme exacte de l'interaction. On peut, par contre, évaluer empiriquement l'élément de matrice nucléaire moyen d'une transition si la période t, E_0 et Z sont déterminés expérimentalement et si l'on fait une hypothèse sur l'ordre l et le changement de spin ΔI. Dans le cas particulier de l'interaction scalaire, en supposant la transition d'ordre l, on peut utiliser l'expression de la probabilité totale de désintégration, qu'on obtient en intégrant (1). Nous utiliserons dans la suite, des expressions approchées des éléments de matrice nucléaires moyens, valables pour toutes les formes d'interaction qui contiennent une proportion importante d'interaction du type de Gamow-Teller. Au lieu de calculer les éléments de matrice moyens eux-mêmes, on calcule, en fait, des quantités ft, $f_l t$, $g_l t$ qui leur sont reliées de façon simple.

a. Transition d'ordre zéro. — La relation entre la probabilité totale de désintégration P et l'élément de matrice nucléaire moyen M, peut s'écrire

$$P = \frac{\ln 2}{t} = \frac{1}{t_0} |M|^2 f(E_0, Z) \quad (^4),$$

f dépend de l'énergie E_0 et du Z final et peut être calculé avec une bonne approximation, en tenant compte correctement du champ de Coulomb; t_0 est une constante $\simeq 5.10^3$ s. La quantité calculée habituellement, au lieu de M est le produit ft :

$$ft = \frac{t_0 \ln 2}{|M|^2}.$$

On le calcule même pour les transitions d'ordre supérieur à zéro; sa valeur est une indication utile sur le genre de la transition, mais elle ne correspond pas à l'élément de matrice nucléaire par la relation ci-dessus.

(4) ln désigne le logarithme népérien.

b. Transitions interdites du groupe A ($\Delta I = l + 1$). — On peut faire un calcul simple, en supposant que l'action du champ de Coulomb est faible ($Z \ll 137$) et en négligeant devant 1 le rapport $\frac{v}{c}$ des nucléons. La probabilité de désintégration, pour l'ordre l, prend alors la forme

$$P = \frac{\ln 2}{t} = \frac{1}{t_0} \frac{4\pi}{(l+1)[1.3\ldots(2l+1)]^2} f_l(E_0, Z) |M_l|^2. \quad (3)$$

On voit que la valeur de l'élément de matrice nucléaire moyen M_l se déduit simplement de celle du produit $f_l t$. On peut calculer f_l approximativement par

$$f_l = (E_0^2 - 1)^l f(E_0, Z).$$

c. Transitions interdites du groupe B ($\Delta I = l$) (5). — Pour ces transitions l'effet du champ de Coulomb est plus compliqué que pour celles du groupe A; même en le supposant très faible ($Z \ll 137$) il faut faire une autre approximation pour obtenir un résultat simple :

$$2cp \quad \frac{Ze^2}{R},$$

p est l'impulsion de l'électron, e sa charge et R le rayon du noyau (6). La relation entre la période et l'élément de matrice nucléaire moyen s'écrit alors, pour une transition d'ordre l :

$$\frac{\ln 2}{t} = \frac{1}{t_0} \frac{4\pi}{(l+1)[1.3\ldots(2l+1)]^2} g_l(E_0, Z) |M_l|^2, \quad (4)$$

avec

$$g_l(E_0, Z) \simeq D_l \left(\frac{Z}{137}\right)^2 \frac{1}{\rho^2} (E_0^2 - 1)^{l-1} f(E_0, Z),$$

D_l est un nombre fonction de l et voisin de 2 pour les premières valeurs de l. La valeur de $|M_l|^2$ se déduit simplement de celle du produit $g_l t$.

8. **Comparaison des éléments de matrice nucléaire d'ordre différents.** — Le calcul montre que, pour les transitions des deux groupes A et B, $|M_l|^2$ est du même ordre de grandeur que $|< r^l Y_l >|^2$, où r est exprimé en unités $\frac{\hbar}{mc}$. On peut faire les évaluations grossières suivantes :

$|< r^l Y_l >|^2$ est d'après (2) la somme de plusieurs termes en nombre variant de 1 à $2l + 1$; on peut en tenir compte par un facteur $l + 1$ (7).

(5) Si l a la plus petite valeur compatible avec les règles de sélection sur le spin et la parité, ΔI ne peut pas être $< l$, sauf pour $l = 1$, comme on le voit sur le tableau III.

(6) $\frac{Ze^2}{R}$ en MeV $\simeq ZA^{-\frac{1}{3}}$ et pour un électron d'énergie maximum : $2cp$ en MeV $\simeq (E_0^2 - 1)^{\frac{1}{2}}$.

(7) On prend $l + 1$ plutôt que l, par exemple, pour faire disparaître le facteur $l + 1$ dans (3) ou (4).

Dans chacun de ces termes :

la présence de r^l équivaut environ à un facteur ρ^{2l};
la présence de $Y_l^{M-M'}$ équivaut environ à un facteur $|Y_l^{M-M'}|$ moyen $= \frac{1}{4\pi}$.

On est donc amenée à poser

$$|M_l|^2 \sim |\langle r^l Y_l \rangle|^2 \sim \frac{(l+1)\rho^{2l}}{4\pi} |M_0|^2,$$

M_0 étant de l'ordre de grandeur d'un élément de matrice de transition $l = 0$. Il en résulte alors que, pour une transition d'ordre l, la quantité suivante :

$$\varphi_l t = \frac{\rho^{2l}}{[1.3\ldots(2l+1)]^2} f_l t \quad \text{pour le groupe A};$$

$$\gamma_l t = \frac{\rho^{2l}}{[1.3\ldots(2l+1)]^2} g_l t \quad \text{pour le groupe B};$$

a le même ordre de grandeur que le ft d'une transition $l = 0$. Il y a deux ordres de grandeurs possibles pour $\varphi_l\, t$ ou $\gamma_l t$, un pour les transitions ordinaires qui est celui des ft des transitions permises (10^5) et un pour les transitions relativistes (10^7).

9. Détermination du genre d'une transition. — On peut tirer de ce qui précède une méthode systématique pour déterminer le genre ou limiter les genres possibles d'une transition. Connaissant t, E_0 et Z pour une transition, on calcule ft et les $\varphi_l\, t$, $\gamma_l t$ pour diverses valeurs de l et l'on ne retient que ceux qui ont un ordre de grandeur acceptable. Si, par exemple, $\varphi_l t \sim 10^5$, la transition peut être du genre $\Delta I = l + 1$, $\pi_i \pi_f = (-1)^l$. On utilisera, en pratique, les formules du tableau IV qui donnent les logarithmes décimaux de φ_l et γ_l. Pour préciser l'ordre de grandeur acceptable pour $\varphi_l t$ et $\gamma_l t$, il faudra les calculer pour des transitions de genre connu par ailleurs. Disons tout de suite qu'on peut admettre que log ft, log $\varphi_l t$ ou log $\gamma_l t$ doit être compris entre 4 et 6 ([8]) (ou si l'on veut inclure quelques cas particuliers, entre 4 et 7) et qu'on peut ignorer les transitions relativistes.

TABLEAU IV.

$$\log\varphi_l = \log f + a_l + l \log\left[A^{\frac{2}{3}}(E_0^2 - 1)\right],$$
$$\log\gamma_l = \log\varphi_{l-1} + b_l + 2\log Z \quad (\varphi_0 = f)$$

(log désigne le logarithme décimal).

l.	a_l.	b_l.	l.	a_l.	b_l.
1....	— 5,8	—5,0	4....	—25,4	—4,8
2....	—12,1	—5,3	5....	—32,4	—5,0
3....	—18,6	—5,5			

([8]) Ceci ne s'applique pas aux transitions permises entre noyaux miroirs que nous n'aurons pas à considérer.

Manuscrit reçu le 4 février 1952.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] FEENBERG et HAMMACK. — *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 1877.
[2] NORDHEIM. — *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 1894.
[3] HAXEL, JENSEN et SUESS. — *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 1766.
[4] MAYER. — *Phys. Rev.*, 1950, **78**, 16.
[5] NORDHEIM. — *Phys. Rev.*, 1950, **78**, 294 L.
[6] TAKETANI et al. — *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 441 L.
[7] Nuclear shell structure and β decay. *Rev. Mod. Physics* 1951, 23, 315.
I. MAYER, MOSKOWSKI et NORDHEIM. — Noyaux de A impair. — II. NORDHEIM. — Noyaux de A pair.
[8] UMEZAWA, NAKAMURA, YAMAGUCHI et TAKETANI. — *Prog. Theor. Phys.*, 1951, **6**, n° 3, 408.
[9] SCHIFF. — Quantum mechanics, Mc Graw-Hill, chap VII. — MOTT et SNEDDON. — Wave mechanics and its applications, Oxford, chap. VI. — KEMBLES. — The fundamental principles of quantum mechanics, Mc Graw-Hill.
[10] BLATT et WEISSKOPF. — Ouvrage à paraître sur la Physique nucléaire théorique, chap VII.
[11] WU. — *Rev. Mod. Physics*, 1950, **22**, 386.

LETTRES A LA RÉDACTION

REDRESSEMENT PAR CONTACT SUR LE TELLURE

Par J. LAGRENAUDIE,
Laboratoire de Physique E. N. S.

Des essais systématiques de contact tellure-métal ont été effectués avec un appareil analogue à un détecteur à germanium, à température ordinaire. Le tellure était en blocs mono- ou polycristallins de 0,2 Ω/cm environ. La caractéristique courant tension, en alternatif, était observée à l'oscillographe et des mesures de courant moyen redressé et tension maximum supportée ont été faites. Le contact était à pointe, comme en détecteur à Ge.

En alternatif, les seuls métaux donnant un redressement net sont ceux de faible travail d'extraction et revêtus d'une couche d'oxyde : Mg, Ca, Ba, Sr, Li, Na, K; les métaux Zn, Be, Al sont dans un cas limite. Les métaux lourds ou précieux : Fe, Cu, Sn, Pb, Ag, Au, Pt et même le La, le Zr et le Th, ne donnent que des contacts ohmiques.

Dans le cas de Mg et calcalins ou alcalino-terreux, on observe un redressement net (rapport de 100 environ), instantané, stable, indépendant de la fréquence jusqu'à 10 kc environ, sauf effets dus à la capacité.

Le contact Te-Mg tient 20 V, en débitant 1 mA redressé, et les autres sont analogues; la barrière, dans le cas de ce contact, est d'environ 1 eV, supérieure à la bande interdite du tellure. Avec Zn, Be et Al, on peut difficilement obtenir des contacts redresseurs médiocres, débitant 1 mA redressé sous 1 V maximum; on favorise le redressement par Zn en l'oxydant en surface par NO_3H et la barrière obtenue peut atteindre 0,8 V. Tous les redressements se font dans le sens Te→ métal; comme le tellure est de type *p*, et que la barrière atteint une hauteur de 1 eV environ avec Mg, on est amené à la théorie d'une barrière de Motl et Schottky mixte, partie dans le Te et partie dans la couche d'oxyde recouvrant le métal; ces oxydes, comme BaO, MgO, ZnO, peuvent devenir de type *n* par excès de métal, et c'est peut-être là la raison du formage, élévation lente de tension, qui améliore le contact Te-Mg, jusqu'à tension de 20 V environ. Le rôle essentiel de la couche d'oxyde est souligné par l'échec de Zr et Th, et s'explique par le fait que le tellure seul a une bande interdite trop étroite pour donner une barrière suffisante; il se distingue ainsi du sélénium.

Le cadmium, non redresseur normalement, peut, par formage du contact, donner un bon redressement (2 mA redressé sous 4,5 V) même à 1500 c; mais la nécessité du formage indique qu'il s'agit ici d'un composé Te-Cd, non détruit par électrolyse, qui joue un rôle essentiel dans le redressement. Celui-ci est encore dans le sens Te→métal.

Des essais de redressement en continu accusent des dissymétries, dans le sens Te→métal, non suelement avec Mg, mais aussi avec Cu, Ag, Mo, W, Al; dans le sens direct, le courant augmente jusqu'à un maximum de 45 mA sous 2 V avec un fil fin d'argent, par exemple; en sens inverse, le courant, après un pulse court, retombe en 1 s environ à une valeur très faible, et le rapport obtenu dépasse 250 avec W, 1000 avec Al. Même en large surface, Ag présente une faible dissymétrie, dans un rapport de 8 à 10 par exemple, par contact sur le tellure. Ces effets, bien que de même sens que le redressement véritable, ne subsistent pas en alternatif et sont attribués à des formages chimiques comportant déplacement d'ions; on peut penser, par exemple, avec le contact Te-Ag, à formation ou électrolyse d'un tellurure en phase solide. Ces effets en continu sont à rapprocher des creeps présentés par les contacts sélénium-métal et rendent nécessaires, pour obtenir un contact purement ohmique sur le tellure, des électrodes en graphite.

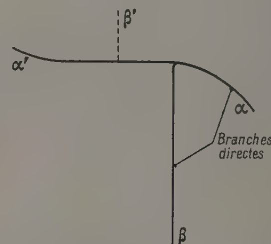


Fig. 1. — Forme de caractéristique à deux branches directes. (B obtenue par formage).

A noter que parfois, sur Te presque intrinsèque Au et Pt donnent une très légère dissymétrie en sens métal→tellure, encore imputable à un effet Schottky.

Manuscrit reçu le 18 janvier 1952.

SUR UNE MÉTHODE D'APPROXIMATION POUR LES TRAJECTOIRES SINUEUSES DES LENTILLES TRÈS CONVERGENTES

Par F. Bertein.

La méthode d'approximation exposée en [1] s'applique mal aux trajectoires $s(z)$ des lentilles les plus convergentes, car ces trajectoires présentent une forme sinueuse et sont, de ce fait, difficilement représentables par des polynomes simples.

On cherchera alors à faire figurer *a priori* dans l'expression approchée de $s(z)$ une fonction présentant cette sinuosité.

Soit, pour fixer les idées, le cas d'une *lentille électrostatique de révolution dont le potentiel v (z) est symétrique en z*; en mettant en évidence les deux premiers termes du développement de ce potentiel

$$v(z) = 1 + v_2 z^2 + u(z). \qquad (1)$$

Cherchons tout d'abord *la trajectoire fondamentale s(z) impaire en z*. On connaît cette solution, soit $\alpha(z)$, dans le cas où $u(z) \equiv 0$ (il s'agit alors du champ dit hyperbolique); pour les valeurs de z non voisines de zéro (telles que l'on ait $v_2 z^2 > 1$), $\alpha(z)$ s'écrit

$$\alpha(z) = s_\omega z^\omega + s_\omega^\star z^{\omega^\star} \qquad (2)$$

(*, symbole de conjugaison)

$$\omega = \frac{j}{\sqrt{2}} \qquad (j = \sqrt{-1}),$$

$$s_\omega = j\left(2\sqrt{\sqrt{v_2}}\right)^\omega.$$

Revenant à la loi (1) complète, la trajectoire $s(z)$ cherchée est très voisine de $\alpha(z)$ dans sa partie sinueuse; l'on cherchera, par suite, à la représenter à l'aide du développement limité

$$s(z) = \alpha(z) + s_3 z^3 + s_5 z^5, \qquad (3)$$

c'est-à-dire dans les mêmes conditions de validité de (2)

$$s(z) = s_\omega z^\omega + s_\omega^\star z^{\omega^\star} + s_3 z^3 + s_5 z^5. \qquad (4)$$

Les coefficients s_5 et s_5 seront calculés suivant le procédé [1]. A cet effet on considère tout d'abord l'expression obtenue en substituant (3) dans le premier membre de l'équation des trajectoires; c'est là une forme bilinéaire $p(s, v)$ vis-à-vis des fonctions s et v et que l'on peut écrire

$$p(s, v) = p(\alpha, u) + \sum_{k=3,5} p(s_k z^k, v),$$

l'expression (2) pouvant être utilisée dans le premier terme.

Il en résulte les expressions suivantes pour les divers « moments » P_i de p

$$P_i = \sum_k P_{ik} s_k \qquad (k = \omega, \omega^\star, 3, 5),$$

où

$$P_{i\omega} = (3\omega^2 - 3\omega + i^2 - i)\, U_{i+\omega-2} + (\omega - i)\, u(1) + u'(1),$$

$$P_{ik} = (3k^2 - 3k + i^2 - i)\, V_{i+k-2} + (k - i)\, v(1) + v'(1) \qquad (k = 3, 5)$$

(les moments U_i et V_i des fonctions u et v se ramènent les uns aux autres et sont aisément calculables dans le cas le plus fréquent où $u(z)$ peut s'écrire sous forme d'un polynome simple).

Il suffit d'annuler deux des moments P_i, en principe ceux d'indices $i = 1, 3$ pour obtenir un système linéaire déterminant s_3 et s_5

$$P_{11} s_1 + P_{13} s_3 = -(P_{1\omega} s_\omega + P_{1\omega}^\star s_\omega^\star),$$

$$P_{31} s_1 + P_{33} s_3 = -(P_{3\omega} s_\omega + P_{3\omega}^\star s_\omega^\star),$$

les 2e membres étant connus.

L'obtention de la *trajectoire fondamentale paire en z* serait analogue; l'on aurait alors $s_\omega = (2\sqrt{v_2})^\omega$ et les termes supplémentaires à faire figurer en (3) seraient $s_4 z^4 + s_6 z_6$; on peut annuler ici les moment P_i d'indices $i = 1, 2$.

Une méthode voisine permettrait la détermination des *trajectoires fondamentales des miroirs électrostatiques* très convergents.

[1] Bertein F. — *J. Physique Rad.*, 1952, **13**, 41 A.

Manuscrit reçu le 10 mars 1952.

SUR LE RAYONNEMENT DE CONVERSION INTERNE DU ^{232}Th

Par Mlle G. Albouy,
Institut du Radium, Laboratoire Curie.

Nous avons étudié le rayonnement de conversion interne du Th^{232} au moyen d'émulsions Ilford G^5 200 μ sensibles aux trajectoires individuelles d'électrons. Ces émulsions, préalablement débarrassées de leurs « électrons de fond » [1] ont été imprégnées et développées suivant les techniques déjà utilisées [2].

M. Bouissières nous a fourni du chlorure de Th pratiquement exempt de RTh. Par transformation en nitrate et addition de citrate de soude, nous avons obtenu un complexe soluble particulièrement stable dans un large domaine de pH [3] et qui nous a assuré une bonne pénétration. De plus, au pH utilisé (pH 7 à 8) la sensibilité est parfaitement conservée.

Nous avons mesuré dans une plaque 3760 trajectoires α parallèles au plan de l'émulsion et toutes attribuables au Th d'après leur parcours. Parmi ces trajectoires, 780 ont une origine commune avec celle d'un électron. Tous ces électrons peuvent être considérés comme associés à la transition Th → MsTh*I*, car la probabilité d'obtenir un β de désintégration du MsTh*II* est négligeable (1). La figure 1 donne la répartition du parcours de ces électrons. Elle présente deux maxima vers 17 μ et 27 μ, correspondant à des énergies respectives de l'ordre de 55 keV et 70 keV et dont la différence est grossièrement égale à la différence des énergies de liaison des couches L et M du MsTh*I*.

(1) Le rayonnement électronique du MsTh*I* a une énergie trop faible [4] pour qu'il soit nécessaire d'en tenir compte.

Par suite, ces deux groupes peuvent s'interpréter comme étant dus à la conversion interne dans les couches L et M d'un rayonnement d'environ 75 keV. Il est difficile, d'après la courbe, d'évaluer le rapport $\frac{Ne_M}{Ne_L}$.

Une statistique plus importante faite sur 1500 électrons associés à des trajectoires α légèrement inclinées par rapport au plan de l'émulsion a donné des résultats semblables.

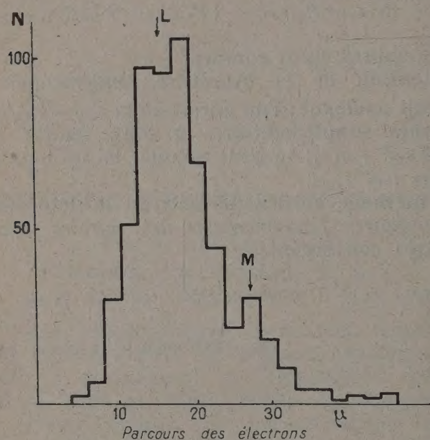


Fig. 1.

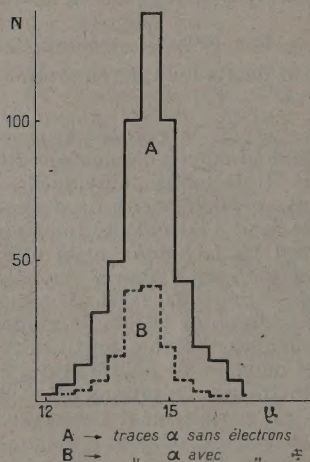


Fig. 2.

Des mesures effectuées dans d'autres plaques ont fourni le même pourcentage d'électrons et la même répartition énergétique.

Si l'on trace la répartition en longueur des trajectoires α strictement parallèles au plan de l'émulsion (*fig.* 2), on trouve que le parcours moyen des traces α sans électrons est légèrement supérieur à celui des traces α associées aux électrons. Jarvis et Ross [5] ont déjà signalé un fait semblable dans le cas de l'Io.

Il résulte des mesures ci-dessus que la transition Th→MsTh*I* laisse le MsTh*I* dans un état excité de l'ordre de 75 keV dans environ 20 pour 100 des désintégrations. Un rayonnement de 75 keV étant vraisemblablement très converti, le Th doit présenter une raie de structure fine à 75 keV de l'état fondamental dans environ 20 pour 100 des désintégrations. Une telle intensité est en accord avec les estimations que l'on peut obtenir à partir de la formule de Gamow.

Nous avons également observé quelques α associés à deux électrons, mais leur faible nombre ne permet pas de les attribuer avec certitude à un phénomène particulier. Une étude plus détaillée paraîtra ultérieurement.

[1] Albouy G. — *C. R. Acad. S.*, 1950, **230**, 1351.
[2] Alnouy G. et Teillac J. — *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **232**, 325 et 1952, **234**, 829.
[3] Haïssinskt M. et Yang Jeng-Tsong. — *Anal. Chim. Acta*, 1949, **2**, 422.
[4] Lecoin M., Perey M. et Teillac J. — *J. Physique rad.*, 1949, **10**, 33.
[5] Jarvis C. I. D. et Ross M. A. S. — *Proc. Phys. Soc.* A, 1951, **54**, 535.

Manuscrit reçu le 5 mars 1952.

COMPTEURS A REMPLISSAGE INTERNE POUR LA NUMÉRATION DE PARTICULES β DE FAIBLE ÉNERGIE

Par MM. Michel Grenon et Rodolphe Viallard,
Laboratoire de Chimie Physique,
Faculté des Sciences, Paris.

La détection et la mesure du rayonnement β de faible énergie, émis par des radioéléments tels que ^{3}H, ^{14}C et ^{35}S, font appel à des compteurs dans lesquels l'élément est introduit sous forme de combinaison gazeuse [1]. La littérature relative à la détermination du tritium ne fait mention que de compteurs à parois métalliques, dont les paliers sont parfois très courts. Il est intéressant de disposer de compteurs ne comportant pas de cathode métallique, en raison des inconvénients qu'entraînent les phénomènes d'adsorption, ou les réactions superficielles. Les compteurs du type Maze [2] remplissent cette condition.

Les compteurs que nous avons réalisés, ne faisant appel à aucune pièce métallique préparée par voie mécanique, sont d'une fabrication extrêmement simple et rapide et leur nettoyage en est rendu immédiat. Ils consistent en une coque de verre ordinaire, revêtue extérieurement d'une couche conductrice. L'anode est un fil de tungstène de 1/10e de millimètre de diamètre; la longueur utile est limitée par deux tubes de garde, en verre également. Les soudures tungstène-verre sont effectuées à l'aide de copperclad. Munis d'un robinet et d'un rodage normalisé, les compteurs peuvent être aisément connectés à un banc de pompage et de remplissage.

Leurs caractéristiques géométriques sont les suivantes : diamètre, 3 cm; longueur totale, 23 cm; longueur utile de l'anode, 16 cm.

Le mélange de remplissage choisi est le mélange

standard de Trost [3] : vapeur d'alcool (1 cm de mercure), argon (9 cm de mercure) avec lequel les caractéristiques suivantes ont été obtenues : seuil à 1040 V, plateau d'une longueur moyenne de 550 V, commençant environ 30 V au-dessus du seuil, pente de 2 à 4 pour 100. Vu leur photosensibilité et pour les protéger de la faible radioactivité ambiante, ces compteurs ont été expérimentés dans une chambre noire, en plomb, de 5 mm d'épaisseur. Le mouvement propre dans ces conditions est de 140 coups/mn au milieu du plateau. La sensiblité à une ampoule d'uranium est bonne et comparable à celle d'un autre compteur standard.

Ces compteurs sont remarquablement stables dans le temps. Certains ont été vidés et remplis de nouveau à de très fréquentes reprises sans que leurs caractéristiques en aient été sensiblement modifiées.

En vue des essais avec le tritium, nous avons modifié la composition du mélange de remplissage. A la combinaison initiale de 1 cm Hg de vapeur d'alcool et 9 cm Hg d'argon ont été ajoutées différentes pressions d'hydrogène, variant entre 1/10 de millimètre et 4 cm. L'incidence sur les caractéristiques du compteur est une augmentation du seuil, atteignant environ 300 V pour 4 cm. Le plateau conserve sa longueur, mais commence environ 40 à 80 V au-dessus du seuil. La pente varie de 2 à 4 pour 100.

Comme, d'autre part, les seuils sont sensibles à de très légères différences de la pression d'alcool [4], nous avons réalisé pour cette étude de l'influence de l'hydrogène une série de remplissages différentiels. Deux compteurs choisis pour leur identité de comportement, furent simultanément remplis avec le même mélange alcool-argon, mais à des pressions différentes d'hydrogène. On obtint ainsi, par exemple, des seuils à 1345 V pour 24 mm et 1425 V pour 35 mm d'hydrogène.

Ces résultats suggèrent que, pour des comparaisons de sensiblité, par exemple, il est possible par addition d'hydrogène à une pression convenable, d'ajuster le seuil à un voltage moyen déterminé.

Ces compteurs ont en définitive l'avantage d'être simples dans leur fabrication, faciles à manier, stables et fidèles dans leur comportement, et de présenter d'excellents plateaux.

Quelques essais ont été déjà effectués avec le tritium. L'activité d'un échantillon d'hydrogène renfermant du tritium a pu être déterminée de manière satisfaisante. Nous avons pu constater au cours de nos essais un avantage certain de ces compteurs sur les compteurs à paroi métallique. Il est possible d'effectuer dans une même journée, avec un compteur, deux séries de mesures sur des échantillons d'activité différente; une heure de pompage est toujours suffisante pour que le compteur retrouve ses caractéristiques habituelles. Dans des essais effectués parallèlement, tant avec un compteur à coque d'aluminium obligeamment mis à notre disposition par M. le Professeur Joliot, qu'avec un compteur à cathode de cuivre, le dégazage n'était achevé qu'au bout d'une période d'environ 3 jours.

Les résultats des mesures avec le tritium, ainsi que les détails expérimentaux seront l'objet d'une prochaine publication.

[1] Bernstein et Ballentine. — *Rev. Sc. Instr.*, 1950, **21**, 158-162.
[2] Maze R. — *J. Physique Rad.*, 1946, **7**, 164.
[3] Trost. — *Physik. Z.*, 1935, **36**, 801; *Z. Physik*, 1937, **105**, 399.
[4] Spatz. — *Phys. Rev.*, 1943, **64**, 236.

Manuscrit reçu le 4 avril 1952.

EFFETS DE REDRESSEMENT SUR LES BISULFURES DE MOLYBDÈNE ET DE TUNGSTÈNE.

Par J. Lagrenaudie,
Laboratoire de Physique, E. N. S.

1. Sulfure de Molybdène. — L'étude a porté sur la molybdenite naturelle, MoS_2, en lames clivées, soudées directement ou après cuivrage sur une base formant contact à large surface. La molybdénite artificielle, formée par action du soufre sur MoO_4Na_2,

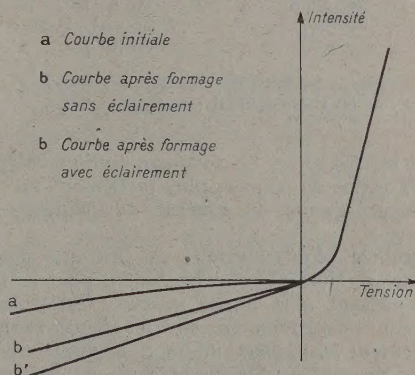


Fig. 1. — Caractéristiques *i-v* sur MoS_2.

se présente en paillettes que l'on peut refondre, mais présente alors une conductibilité élevée, sans effets de redressements intéressants.

La caractéristique courant tension, étudiée à l'oscillographe et en continu, présente un aspect analogue à celui des courbes obtenues avec la galène; la nature du métal utilisé pour faire la pointe redresseuse (Cu, Au, Pt, Fe, Mg, Ca) est sans influence, ce qui indique un redressement par barrière *n-p* de surface. On trouve les deux types, *n* et *p*, souvent sur la même lamelle. La branche directe présente une asymptote qui coupe l'axe des tensions à l'abcisse V_D, qui représente la hauteur de la barrière : celle-ci est, suivant les cas, de 0,2 à 1 V environ, ce qui est une limite inférieure, pour la bande interdite dans MoS_2; on redresse facilement 20 V, avec résistance de charge de 20 000 Ω, et en certains points on peut tenir 110 V, mais la branche inverse s'incurve alors nettement; l'intensité redressée peut atteindre 1 mA; la résistance, en sens direct, est de plusieurs milliers d'ohms, ce qui est le défaut essentiel

d'un tel redresseur, dû à la structure feuilletée. Le rapport de redressement peut atteindre la centaine de façon stable. La branche inverse est concave vers les i négatifs en tous les cas : il n'y a pas de valeur limite du courant inverse, ce qui implique que la barrière soit très mince. Les mêmes caractères se remarquent sur les deux types de contact, n et p.

Par léger brûlage du contact, tel que décharge d'un condensateur de quelques μF chargé sous 90 V, on déforme souvent la caractéristique, avec diminution de résistance inverse; la branche inverse passe de a en b et devient photosensible, la lumière accroissant la conductivité inverse (*fig.* 1); la branche directe peut être affectée de la même façon : il y a ici, soit photoconductivité de surface, soit phototransistance, à rapprocher des effets obtenus par formage de contacts sur germanium. Cependant, des essais de transistance à deux pointes ou monopointe sont restés

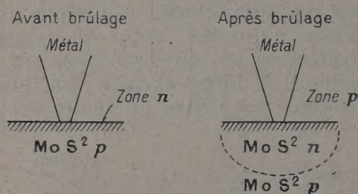


Fig. 2. — Inversion du type de MoS_2 p et du redressement par léger brûlage.

jusqu'ici infructueux. Le formage indiqué s'applique aux deux types de courbe, plus facilement au type p, qui d'ailleurs donne, en général, de meilleurs redressements.

Un brûlage plus énergique ne fait que détériorer un contact n, tandis qu'un contact p peut se trouver inversé, passant à la forme n, avec résistances plus faibles que primitivement sur les deux branches : non seulement MoS_2 passe de p à n, ce qui se comprend par perte de soufre, due au brûlage, au voisinage de la pointe, mais il se forme sur la surface r une couche p, créant une barrière nouvelle, probablement par fixation immédiate d'oxygène, ou du soufre extrait par le brûlage (*fig.* 2). On peut comprendre cet effet par production d'une barrière de surface d'origine chimique. Les contacts redresseurs naturels notamment ceux de type p, peuvent s'expliquer simplement par existence d'états de surface physiques.

2. **Sulfure de tungstène WS_2.** — Très rare dans la nature (tungsténite), il a été préparé, par action de soufre sur WO_4Na_2, en lamelles brillantes, comprimées ensuite à froid sous 9 t/cm², sous forme de plaquettes.

Bien que très imparfaites, notamment à cause des contacts intergrains, ces plaquettes, qui renferment du soufre en excès, manifestent, à l'oscillographe des redressements, de type p uniquement, avec toutes sortes de métaux (Mg, Be, Al, U, Zn, Cu, Pt); l'effet est peu marqué avec Cu ou Pt, qui ont un travail d'extration élevé. Mais avec Mg ou Be, on peut obtenir une caractéristique intéressante, même sous 110 V, avec une résistance de charge de 32 000 Ω; avec Zn, Al ou U, 40 V et 67 000 Ω de charge; cependant l'intensité redressée est limitée à 1 mA environ. La nature du métal joue ici un rôle plus important que dans le cas de MoS_2, ce qui peut se comprendre, non seulement par le fait que WS_2 n'a pas été traité intentionnellement pour l'obtention de barrières np sur les grains — ce qui augmenterait beaucoup la résistance de la plaquette — mais que sa bande interdite est certainement plus faible que dans le cas de MoS_2 : un essai de photoconductivité montre que WS_2 est sensible aux radiations situées au delà de 1,2 μ et non en lumière visible, ce qui correspond à une bande interdite nettement inférieure à 1 eV. Néanmoins, si l'on peut obtenir WS_2 en monocristaux, il sera peut-être plus intéressant que MoS_2, parce que la résistance de spreading dans le bloc du semi-conducteur sera plus faible. On ne peut compter utiliser WS_2 naturel, alors que l'emploi de molybdénite peut être envisagé.

Les essais en alternatif indiqués ici ont été effectués à 50 p/s.

Manuscrit reçu le 14 mars 1952.

ERRATA.

Lettre de Mme S. Robin et M. V. Schwetzoff, t. 13, avril 1952, p. 239.

Ligne 35, *au lieu de* 6.10^{-5} A, *lire* 3.10^{-8} A.

Figure 1, sur l'axe des abscisses, *au lieu de* 3500, *lire* 4500.

Page 240, ligne 18, la phrase : « Nous voyons une coupure... » se rapporte à la figure 1.

Le Gérant : Maurice Blondin. 141235 Imp. Gauthier-Villars, 55, quai des Grands-Augustins, Paris. — 1952.